



# Impact de la mousson africaine sur la composition chimique de l'atmosphère en Afrique équatoriale

Idir Bouarar

## ► To cite this version:

Idir Bouarar. Impact de la mousson africaine sur la composition chimique de l'atmosphère en Afrique équatoriale. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2009. Français. NNT : 2009PA066359 . tel-00767800

**HAL Id: tel-00767800**

**<https://theses.hal.science/tel-00767800>**

Submitted on 20 Dec 2012

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**THÈSE de DOCTORAT  
de l'UNIVERSITÉ PARIS VI – PIERRE ET MARIE CURIE**

**Spécialité : Physico-chimie de l'atmosphère**

Présentée par

**Idir BOUARAR\***

Pour obtenir le grade de DOCTEUR  
De l'UNIVERSITÉ PARIS VI – PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

**Impact de la mousson africaine sur la composition  
chimique de l'atmosphère en Afrique équatoriale**

Soutenue publiquement le 25 septembre 2009, devant le jury composé de :

Mme. Laurence PICON	Président
Mme. Céline MARI	Rapporteur
Mme. Virginie MARÉCAL	Rapporteur
Mme. Kathy LAW	Directrice de thèse
Mme. Mai PHAM	Co-directrice de thèse
M. Vincent-Henri Peuch	Examineur
M. Federico FIERLI	Examineur
Mme. Sophie SZOPA	Invitée

---

\* LATMOS, IPSL, 4 Place Jussieu, boîte 102, 75252 Paris Cedex 05, France.  
idir.bouarar@aero.jussieu.fr



## Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Mesdames Laurence Picon, Céline Mari, Virginie Marécal, Sophie Szopa et Messieurs Vincent-Henri Peuch et Federico Fierli pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail en acceptant de participer au jury. Je tiens à remercier tout particulièrement Céline Mari et Virginie Marécal d'avoir accepté de rapporter sur mon travail de thèse.

Kathy Law et Mai Pham ont dirigé ma thèse. Je les remercie profondément pour leurs conseils, leur disponibilité et leur soutien. Leurs grandes qualités scientifiques et humaines m'ont apporté beaucoup d'aide et m'ont permis de découvrir beaucoup de choses en particulier dans le domaine de la recherche. Je tiens à remercier aussi Fabrice Jégo d'avoir corrigé une partie de mon manuscrit.

J'exprime ma reconnaissance à Sophie Szopa, Anne Cozic et Mai Pham qui m'ont beaucoup aidé à utiliser le modèle LMDz\_INCA et à réaliser mes simulations. Merci pour votre disponibilité et gentillesse. J'exprime ma reconnaissance aussi à Claire Granier, Aude Mieville, Elsa Real, Fahim Khokhar et Ariane Bazureau pour leurs conseils et leur aide technique. Je remercie également Philippe Weill pour son soutien technique et informatique. Merci aussi à l'équipe du projet AMMA qui a mis à disposition les données de cette campagne.

Les travaux présentés dans cet ouvrage ont été réalisés au LATMOS (Laboratoire Atmosphère, Milieux, Observations, ex Service d'aéronomie). Je remercie ses directeurs Daniel Hauser et Alain Hauchecorne de m'y avoir accueilli. Merci à Gérard Ancellet de m'avoir accueilli dans son équipe TACT. Merci à tous ceux du laboratoire qui m'ont aidé de près ou de loin.

Enfin je tiens à remercier ma famille, en particulier Lylia, mes parents et mes amis pour leurs encouragements et leur soutien.



## Résumé

Des quantités importantes de gaz réactifs et de particules sont émises en Afrique équatoriale par l'activité humaine et naturellement par les écosystèmes forestiers, les éclairs et les sols. Les différents processus de transport qui caractérisent cette région pendant la saison de la mousson (e.g. Jets d'Est Africain et Tropical, convection profonde) peuvent conduire à la redistribution de ces émissions en dehors du continent Africain et influencer ainsi aussi bien le bilan régional que global de l'ozone ( $O_3$ ). Le but de mes travaux de thèse est d'améliorer notre compréhension sur l'impact de ces émissions et de ces processus de transport sur la composition chimique de l'atmosphère en Afrique équatoriale. Les données mesurées pendant la campagne AMMA qui a eu lieu en été 2006 en Afrique de l'ouest ainsi que les données du programme MOZAIC sont analysées et confrontées aux résultats du modèle global LMDz-INCA. Cela permet d'évaluer les performances de ce modèle au dessus de l'Afrique équatoriale d'une part et, d'autre part, d'analyser l'influence des différentes émissions et des différents processus de transport qui caractérisent cette région pendant la saison de la mousson sur le bilan régional de l'ozone. Une description et une validation des résultats du modèle LMDz-INCA avec des observations satellitaires sont présentées dans la première partie de cette thèse. La deuxième partie est consacrée à l'impact du transport convectif et des oxydes d'azote ( $NO_x$ ) émis par les éclairs sur l'ozone et ses précurseurs. L'analyse de l'impact des émissions par les feux de biomasse depuis l'Afrique centrale est ensuite présentée. La dernière partie traite de la contribution des émissions africaines et asiatiques au bilan de l'ozone en Afrique équatoriale.

## Summary

Important amounts of reactive gases and particles are emitted over equatorial Africa by human activities and naturally by forests, lightning and soils. The different transport processes that characterize this region during the monsoon season (e.g. African and Tropical Easterly Jets, deep convection) can redistribute these emissions downwind out of Africa and, hence, have an impact on the regional as well as on the global ozone ( $O_3$ ) budget. The main objective of my thesis is to improve our knowledge of the impact of these emissions and transport processes on the chemical composition of the atmosphere over equatorial Africa. For this purpose, the in-situ data measured during the AMMA field campaign which took place over west Africa in summer 2006 together with MOZAIC data and satellite observations are analysed and compared with LMDz-INCA global model simulations. This allows evaluation of the model performance over equatorial Africa and, on the other hand, to analyse the influence of emissions and transport processes during the monsoon season on the regional ozone budget. A description and first validation of the LMDz-INCA results against satellite data are presented in the first part of this thesis. The second part is dedicated to the impact of deep convection and lightning nitric oxides ( $NO_x$ ) emissions on ozone and its precursors. The impact of biomass burning emissions over central Africa is then discussed. Finally, the last part is dedicated to analysis of the contribution of African and Asian emissions to the regional ozone budget.

# Tables des matières

<b>Introduction</b>	<b>9</b>
<b>1 Contexte scientifique</b>	<b>13</b>
1.1 Dynamique africaine et mise en place de la mousson	13
1.1.1 La zone de convergence intertropicale	14
1.1.2 La mise en place de la mousson Africaine	15
1.1.3 Circulation troposphérique en Afrique équatoriale	16
1.2 Généralités sur l’ozone dans l’atmosphère	17
1.2.1 Les principaux précurseurs de l’ozone	17
1.2.1.1 Les composés azotés	18
1.2.1.2 Le monoxyde de carbone (CO)	18
1.2.1.3 Les composés organiques volatiles (COVs)	19
1.2.2 Sources et puits de l’ozone troposphérique	19
1.2.2.1 La production photochimique de l’O <sub>3</sub>	20
1.2.2.2 Destruction photochimique d’O <sub>3</sub>	20
1.2.3 La capacité oxydante de la troposphère	21
1.3 Sources de d’émissions en Afrique	22
1.3.1 Les sources anthropiques	22
1.3.1.1 Combustion des combustibles fossiles	22
1.3.1.2 Combustion de la biomasse	23
1.3.2 Les émissions biogéniques	24
1.3.3 Emissions de NO <sub>x</sub> par les éclairs	26
1.4 AMMA – Un projet de recherche sur la mousson africaine	27
1.4.1 Historique, motivations et objectifs principaux du projet AMMA	27
1.4.2 La campagne AMMA en été 2006	28
1.4.3 Observations MOZAIC	30
1.5 Cadastres d’émissions utilisés	31
1.6 Conclusion	36
<b>2 Description et évaluation globale du modèle LMDz_INCA</b>	<b>39</b>
2.1 Description générale du modèle LMDz	39
2.1.1 Paramétrisation de la convection dans LMDz	41
2.1.2 Développements en cours autour de LMDz	43
2.1.3 Domaines d’application de LMDz	44
2.2 Le module de chimie INCA	44
2.3 Dépôt sec et lessivage	45
2.4 Modélisation des NO <sub>x</sub> produits par les éclairs	46
2.5 Les différentes simulations réalisées	47
2.6 Evaluation des simulations de LMDz_INCA	49

2.6.1 Distribution de CO .....	50
2.6.2 Distribution de NO <sub>2</sub> .....	57
2.6.3 Distribution de HCHO .....	61
2.6.4 Distribution de l'ozone .....	63
2.7 Evaluation de LMDz_INCA dans le cadre du projet AMMA-MIP .....	64
2.8 Conclusion .....	71
<b>3 Influence de la convection et des émissions locales</b> .....	<b>75</b>
3.1 Introduction .....	75
3.2 La convection en Afrique de l'Ouest .....	75
3.3 Influence de la convection sur la composition chimique de la troposphère .....	79
3.3.1 Les vols dédiés à l'étude du transport convectif pendant AMMA .....	79
3.3.2 Evidence de l'influence de la convection pendant la campagne AMMA .....	80
3.3.3 Analyse du transport convectif dans LMDz-INCA .....	88
3.4 Impact des NO <sub>x</sub> produits par les éclairs .....	90
3.4.1 Influence des LiNO <sub>x</sub> dans LMDz_INCA .....	92
3.5 Influence de la convection et des LiNO <sub>x</sub> sur l'ozone .....	96
dans la haute troposphère	
3.6 Conclusion .....	101
<b>4 Influence des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale</b> .....	<b>103</b>
4.1 Introduction .....	103
4.2. Simulations LMDz-INCA et comparaison aux données AMMA .....	104
4.2.1 Analyse des données des vols TLD .....	105
4.2.2 Sondages de l'ozone à Cotonou .....	110
4.2.3 Sensibilité des résultats du modèle aux émissions .....	111
4.3 Impact du transport à longue distance .....	114
4.3.1 Analyse du transport dans LMDz_INCA à l'aide des traceurs .....	115
4.3.2 Variabilité du transport des émissions feux de biomasse .....	118
4.3.3 Transport des émissions feux de biomasse dans la haute troposphère .....	123
4.4 Sensibilité des résultats du modèle aux émissions .....	126
4.4.1 Sensibilité à la quantité d'émissions .....	126
4.4.2 Sensibilité à l'injection des émissions .....	127
4.4.3 Sensibilité à la localisation des émissions .....	130
4.5 Conclusion .....	131
<b>5 Les différentes contributions au bilan régional de l'ozone en Afrique équatoriale</b> .....	<b>133</b>
5.1 Introduction .....	133
5.2 Contribution des LiNO <sub>x</sub> .....	135
5.3 Contribution des NO <sub>x</sub> émis par les sols .....	138
5.4 Contribution des émissions biogéniques .....	141
5.5 Contribution des émissions anthropiques .....	145
5.6 Contribution des émissions des feux de biomasse .....	147
5.7 Contribution des émissions asiatiques .....	150
5.8 Conclusion .....	153

<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>157</b>
<b>Annexe A</b>	<b>163</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>183</b>



# Introduction générale

Sous l'effet des activités humaines (activités industrielles et agricoles, multiplication des moyens de transport, accroissement démographique), les concentrations de gaz à effet de serre (GES) dans l'atmosphère se sont fortement accrues depuis l'époque préindustrielle (Etheridge et al., 1992 ; Barnola et al., 1995). Ces GES, parmi lesquels figure le dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ ), la vapeur d'eau ( $\text{H}_2\text{O}$ ), l'ozone ( $\text{O}_3$ ), le méthane ( $\text{CH}_4$ ) et le protoxyde d'azote ( $\text{N}_2\text{O}$ ), jouent un rôle important dans le bilan énergétique global. En effet, ces molécules ont pour caractéristique commune d'absorber une partie des rayons infrarouges émis par la surface de la terre. L'augmentation des GES a induit des modifications profondes de notre environnement. Les GES sont en effet l'un des facteurs à l'origine de l'augmentation de la température moyenne des océans et de l'atmosphère, qui est responsable du réchauffement du climat observé depuis la fin du XX<sup>e</sup> siècle. Aussi, on assiste de plus en plus à des phénomènes de tempêtes, de cyclones et de sécheresses qui sont témoins du changement du climat de notre planète dû à l'excès de GES.

Conscientes des problèmes que pose le changement climatique, les communautés politiques internationales ont pris des mesures restrictives pour réduire et stabiliser les émissions des GES. Des programmes scientifiques, à l'exemple du GIEC (Groupe Intergouvernemental d'Experts sur l'évolution du Climat), ont été aussi mis en œuvre afin de mieux comprendre les risques liés au changement climatique d'origine humaine. Des scénarios d'émissions pour le futur ont également été développés et utilisés dans des simulations numériques afin de réaliser des prévisions sur le changement climatique dans le futur et sensibiliser ainsi la communauté internationale sur les risques encourus.

L'ozone est parmi les gaz traces les plus surveillés dans l'atmosphère non seulement pour son rôle important en tant que GES mais également pour ses conséquences sur la santé humaine et la biosphère. En effet, l'ozone a des effets différents selon qu'il se situe dans la stratosphère (haute atmosphère) ou dans la troposphère (basse atmosphère). Alors que dans la stratosphère il absorbe les rayons ultraviolets particulièrement nocifs pour les êtres vivants et participe au refroidissement de l'atmosphère, dans la troposphère, il contribue au réchauffement climatique. Contrairement aux autres GES, l'ozone est un gaz indirect à effet de serre. En effet, il est généré par des réactions photochimiques qui font intervenir des gaz précurseurs (oxydes d'azote, monoxyde de carbone, composés organiques volatiles...etc).

Les pays tropicaux sont parmi les grandes régions sources de précurseurs d'O<sub>3</sub>. Ces pays, en voie de développement, sont caractérisés en effet par une croissance démographique considérable qui a conduit à l'accroissement de leurs besoins énergétiques et par conséquent à une augmentation des émissions urbaines et industrielles. La densité de la couverture végétale (forêts tropicales, savanes) et les feux de biomasse qui caractérisent ces régions conduisent également à de fortes émissions de précurseurs d'O<sub>3</sub>. Les régions tropicales sont caractérisées aussi par une intensité de l'activité convective qui peut transférer les émissions depuis la basse troposphère vers les hautes altitudes. La circulation atmosphérique qui caractérise la haute troposphère de ces régions (e.g. circulation méridionale de Hadley, circulation zonale dans le jet d'est tropical) peut ensuite redistribuer les émissions de ces régions vers les moyennes latitudes ou la stratosphère. La communauté scientifique internationale s'intéresse ainsi de plus en plus aux problèmes de pollution atmosphérique dans ces régions qui peuvent avoir une influence à plus grande échelle. De nombreuses campagnes de mesures (GTE/ABLE 2A et 2B, LBA en Amazonie, DECAFE-EXPESSO, STARE-SAFARI, SAFARI en Afrique centrale, et TRACE-A en Atlantique Sud) et des réseaux internationaux d'observations (IDAF/DEBITS, AERONET, MOZAIC) ont montré l'importance des régions tropicales pour la chimie atmosphérique aux échelles globale et régionale.

L'Afrique équatoriale intéresse plus particulièrement la communauté scientifique notamment à cause de la variabilité du climat dans ces régions. Ces dernières, notamment les régions du Sahel, ont connu des périodes de sécheresses intenses pendant les années 70s et 80s qui ont eu un impact sur les activités économiques et humaines et ont engendré des famines. Il est donc primordial de comprendre les processus qui contrôlent le système pluviométrique dans ces régions, notamment en étudiant les mécanismes qui interviennent dans la mise en place et la variabilité de la mousson africaine, de manière à améliorer les prévisions saisonnières.

Les émissions de gaz et d'aérosols en Afrique équatoriale jouent un rôle essentiel dans les bilans radiatifs à l'échelle régionale. Des quantités importantes de gaz réactifs et de particules sont en effet émises dans ces régions par l'activité humaine (émissions urbaines, combustion de la biomasse) et par les sources naturelles (e.g. écosystèmes forestiers, les éclairs, les sols). La convection qui caractérise l'Afrique de l'Ouest pendant la saison de la mousson peut transporter ces émissions aussi vers la haute troposphère où elles peuvent être redistribuées par les processus de circulation à grande échelle en dehors du continent africain et influencer ainsi la composition chimique de la troposphère et sa capacité oxydante qui influence la durée de vie de quelques GES comme le CH<sub>4</sub>. Il est donc important d'étudier les processus qui caractérisent la physique et la chimie de la troposphère en Afrique de l'Ouest notamment pendant la saison de la mousson. C'est dans ce contexte qu'est né le projet AMMA (Analyse Multidisciplinaire de la Mousson Africaine) afin de mieux comprendre les mécanismes de la variabilité de la mousson africaine, ses impacts sur la santé humaine, les ressources végétales et les ressources en eau ainsi que sur la composition chimique de l'atmosphère.

Le but de ce travail de thèse est d'étudier l'influence des processus physico-chimiques qui caractérisent l'Afrique de l'Ouest, sur la composition chimique de la troposphère pendant la saison de la mousson. Ce travail s'inscrit dans le cadre de la campagne de mesures AMMA qui a eu lieu en été 2006. Les données in-situ mesurées pendant cette campagne ainsi que les données fournies par le programme MOZAIC et par des observations satellites sont analysées et confrontées aux résultats du modèle global de chimie-climat LMDz\_INCA. Cela permet d'évaluer les performances du modèle LMDz\_INCA d'une part et, d'autre part, de mieux analyser l'influence des émissions de polluants et des processus de transport sur le bilan régional de l'ozone en Afrique équatoriale. Ainsi, les objectifs de cette thèse sont :

- Etudier l'influence du transport convectif pendant la saison de la mousson sur l'ozone et ses précurseurs en Afrique équatoriale ;
- Etudier l'influence des émissions de  $\text{NO}_x$  par les éclairs sur le bilan régional de l'ozone ;
- Analyser l'impact du transport des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sur la composition chimique de la troposphère en Afrique équatoriale ;
- Etudier l'impact que peuvent avoir les émissions asiatiques sur les concentrations d' $\text{O}_3$  au dessus de l'Afrique ;
- Etudier la contribution des émissions africaines ( $\text{NO}_x$  émis par les éclairs et par les sols, émissions biogéniques et anthropiques, émissions des feux de biomasse) et asiatiques au bilan régional d' $\text{O}_3$  en Afrique équatoriale ;

Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit est organisé comme suit : le premier chapitre présente les processus dynamiques qui caractérisent la circulation atmosphérique en Afrique équatoriale ainsi qu'un rappel des processus photochimiques intervenant dans la formation de l'ozone. Les données de la campagne AMMA et du programme MOZAIC sont également présentées dans ce chapitre. Le deuxième chapitre est consacré à la présentation des caractéristiques du modèle LMDz\_INCA et des simulations réalisées au cours de ce travail de thèse. Ce chapitre présente aussi une évaluation générale des résultats du modèle, notamment avec des comparaisons aux mesures satellites de  $\text{CO}$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{HCHO}$  et d' $\text{O}_3$  et aux résultats d'autres modèles de chimie-transport globaux qui ont participé au projet AMMA. Le chapitre 3 est consacré à l'étude de l'impact du transport convectif sur la composition chimique de la troposphère en Afrique équatoriale. Les données de la campagne AMMA, notamment celles mesurées autour des systèmes convectifs, et les simulations de LMDz\_INCA sont utilisées pour étudier l'influence de la convection sur la distribution de l'ozone et de ses précurseurs. Les résultats des simulations du modèle sont utilisés dans cette étude pour une analyse plus approfondie de l'influence des émissions et du schéma de convection utilisé sur les résultats du modèle. Le chapitre 4 est consacré à l'étude de l'influence des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sur la composition chimique de l'atmosphère en Afrique équatoriale. Enfin, le chapitre 5 est consacré à l'étude de la contribution des émissions africaines et asiatiques au budget régional de l'ozone en Afrique équatoriale. Différents tests de sensibilité aux émissions ont été réalisés avec LMDz\_INCA pour analyser la contribution de chaque type d'émissions notamment en Afrique au bilan régional de l'ozone.





# Chapitre 1

## Contexte scientifique.

L'objectif de ce premier chapitre est de présenter des généralités sur l'ozone dans l'atmosphère et sur les processus dynamiques qui caractérisent la circulation atmosphérique en Afrique équatoriale. Dans un premier temps, la circulation atmosphérique en Afrique équatoriale sera décrite. L'intérêt sera porté sur la saison de la mousson et les principaux processus qui interviennent dans sa mise en place seront définis. Un rappel des principaux processus de formation et de destruction de l'ozone dans l'atmosphère sera ensuite présenté. Les principales sources d'émissions des précurseurs de l'ozone en Afrique seront également présentées. La dernière partie de ce chapitre sera consacrée à la description du projet AMMA (Analyse Multidisciplinaire de la Mousson Africaine) et des données utilisées dans cette thèse. Les motivations scientifiques qui ont conduit à la réalisation de ce projet seront ainsi exposées. Les mesures aéroportées et les sondages de l'ozone effectués pendant la campagne de mesures AMMA en été 2006 seront présentés aussi. Enfin, les différents cadastres d'émissions utilisés pour réaliser les simulations avec le modèle global LMDz-INCA, présenté dans le chapitre 2, seront décrits et comparés.

### 1.1 Dynamique africaine et mise en place de la mousson

La répartition spatiale du bilan radiatif est caractérisée par un gradient méridional de température qui s'amplifie aux latitudes moyennes. Les régions tropicales sont en effet les principales sources de chaleur d'origine continentale ce qui entraîne un bilan radiatif excédentaire aux tropiques. C'est ce gradient méridional de température, associé à un gradient vertical aux latitudes tropicales, qui provoque la mise en mouvement de l'atmosphère afin de rééquilibrer la distribution de l'énergie. Ce mouvement se traduit par une circulation méridionale transférant de l'énergie vers les zones déficitaires de la haute troposphère et des moyennes et hautes latitudes. Ainsi, les régions tropicales jouent un rôle important dans le système climatique de la planète.

Par ailleurs, la dynamique africaine est caractérisée par des systèmes anticycloniques permanents qui gouvernent la circulation générale des masses d'air (voir figure 1.1). L'anticyclone du Sahara est centré sur le Maroc pendant l'été boréal

et sur le Maghreb pendant l'hiver. Il suit ainsi un déplacement vers l'équateur en hiver et vers le nord en été. Il est à l'origine des alizés de Nord-Est, appelés Harmattan en Afrique de l'Ouest. Ce flux apporte de l'air chaud et sec après le passage au dessus du Sahara. Il peut s'élever jusqu'à l'altitude 700hPa. Dans l'hémisphère sud, l'anticyclone de Sainte-Hélène est à l'origine des alizés de Sud-Est. Au niveau du Golfe de Guinée, ce flux prend une orientation Sud-Ouest sous l'effet de la force de Coriolis et sous l'effet d'un gradient de pression entre l'anticyclone Sainte-Hélène et une dépression située au niveau du continent africain vers 20°N. Chargé d'humidité au niveau du Golfe de Guinée, ce flux constitue le flux de mousson qui s'introduit sur le continent pendant l'été boréal.

### 1.1.1 La zone de convergence intertropicale

Au dessus de l'Afrique de l'Ouest, la convergence des deux flux Sud-Ouest (alizés) et Nord-Est (Harmattan) forme une zone d'intense convection: la Zone de Convergence Inter-Tropicale (ZCIT). La trace au sol de la ZCIT correspond au Front Inter-Tropical (FIT) (voir figure 1.1) qui marque la zone de contact à la surface entre les vents chauds et secs de Nord-Est et les vents plus frais et humides de Sud-Ouest. Le FIT marque également la position de la convection sèche. Cette zone est située plus au nord que la zone de convection profonde dont l'extension verticale est plus développée et peut atteindre 200 hPa.

L'évolution saisonnière des anticyclones induit une variation latitudinale du FIT et de la ZCIT. Ce système décrit un déplacement en direction du pôle nord entre janvier et juillet où le FIT atteint sa position latitudinale maximale vers 20°N. La position de la ZCIT varie entre 5°N au printemps et une position stable vers 10°N l'été (Janicot et al., 2008). A l'approche de l'hiver, le FIT et la ZCIT migrent inversement vers le sud. Le déplacement du FIT s'accompagne à l'arrière d'un déplacement de la zone de convection profonde. La figure 1.1 illustre le déplacement saisonnier du FIT et la circulation moyenne des vents à 925 hPa en janvier et en août 2006, calculés par le Centre Européen pour les Prévisions Météorologiques à Moyen Terme (CEPMMT).

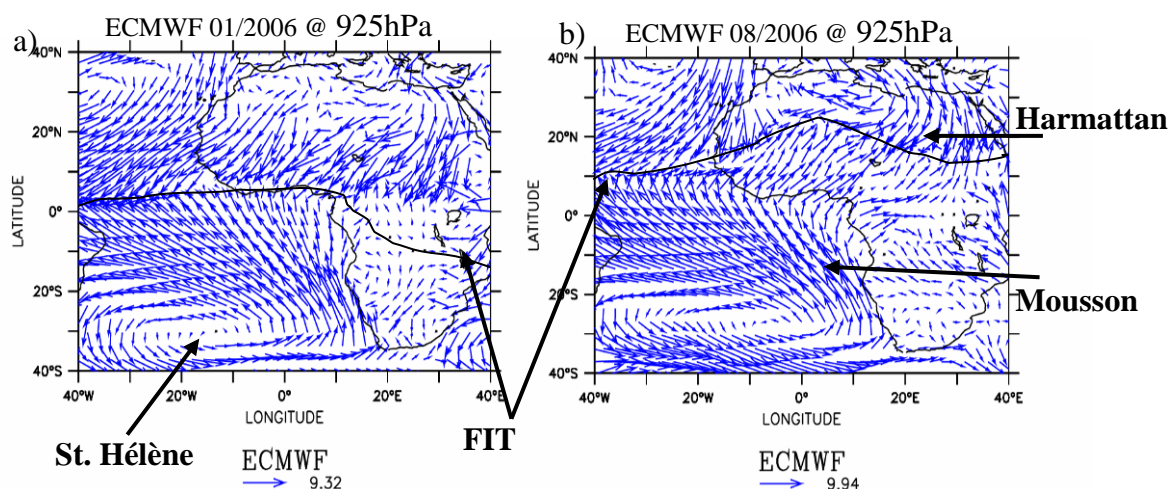


FIG. 1.1 – Circulation moyenne des vents (vecteurs bleus) (m/s) à 925hPa en janvier (a) et en août (b) 2006 calculés par le CEPMMT. Position du FIT (Ligne noire).

### 1.1.2 La mise en place de la mousson Africaine

La dynamique méridienne de la circulation atmosphérique en Afrique équatoriale implique des variations climatiques saisonnières considérables créant l'alternance entre la saison sèche et la saison humide. La transition de la ZCIT entre une première position d'équilibre à 5°N en mai-juin et une deuxième latitude d'équilibre à 10°N en juillet-août marque l'installation du régime de mousson africaine. L'analyse des précipitations en Afrique de l'Ouest sur la période 1968-1990 (figure 1.2) a montré une augmentation graduelle des précipitations du printemps à l'été, puis une diminution rapide en automne qui marque la fin de la saison humide (Sultan et Janicot, 2003).

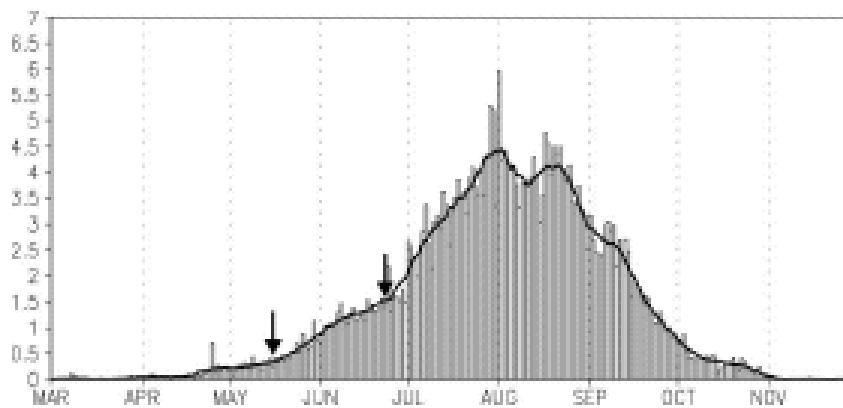


FIG. 1.2 – Variabilité saisonnière des précipitations (mm/jour) à 15°N moyennées entre 1968 et 1990 et entre 10°W et 10°E (Sultan et Janicot, 2003).

Les premières pluies arrivent au printemps vers mi-avril et sont accompagnées d'une intense activité convective. On observe ensuite une baisse des précipitations et une diminution dans l'intensité de la convection vers la fin du mois de mai. Les phénomènes pluvieux et l'activité convective reprennent ensuite progressivement jusqu'à la fin du mois de juin où on observe une deuxième phase de diminution d'intensité par rapport à l'évolution saisonnière. La ZCIT arrive à ce moment à sa latitude la plus au nord et marque ainsi la mise en place de la mousson africaine et de la convection au Sahel. Sur les données des 23 années de la période 1968-1990 analysées par Janicot et al. (2008), la date moyenne marquant le début de la mousson est le 24 juin avec un écart-type de 8 jours.

La mise en place de la mousson s'accompagne de nuages à forte extension verticale, responsables des pluies intenses. Ces nuages, qu'on appelle communément systèmes convectifs, jouent un rôle important dans la composition chimique au dessus de l'Afrique de l'Ouest.

### 1.1.3 Circulation troposphérique en Afrique équatoriale

Les flux de mousson et d'Harmattan (figure 1.1) dominent la circulation des basses couches en Afrique de l'Ouest. La couche de mousson atteint la hauteur de 3000 m. Dans la moyenne troposphère, on trouve un vent thermique appelé Jet d'Est Africain (AEJ en anglais) (Thorncroft and Blackburn, 1999). L'AEJ est centré vers 5°N-10°N et 10°W-10°E en juin où il atteint sa plus grande intensité (Sultan and Janicot 2003). Il se situe à une altitude de 600-700hPa et sa vitesse moyenne peut atteindre 14 m/s. En juillet et en août l'AEJ marque un déplacement vers le nord pour atteindre une position à environ 15°N et sa vitesse diminue à 10 m/s. A partir de septembre, l'AEJ redescend vers le sud et sa vitesse augmente à 12 m/s. La figure 1.3 illustre les champs de vent ECMWF à 600hPa et l'AEJ.

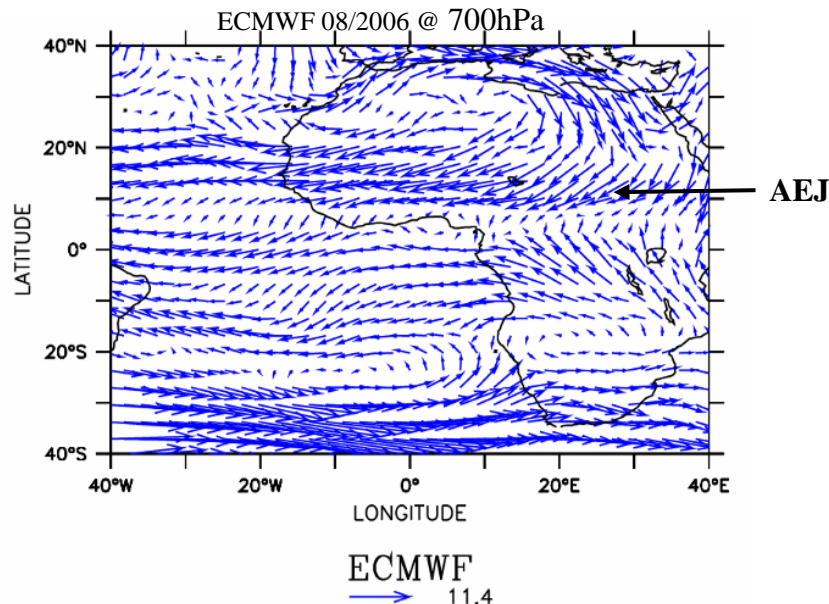


FIG. 1.3 - Circulation moyenne des vents (vecteurs bleu) (m/s) à 700hPa en août 2006 calculés par le CEPMMT.

La haute troposphère dans les régions tropicales est caractérisée par le Jet d'Est tropical (TEJ en anglais). Ce jet est centré sur l'océan Indien à l'altitude 200hPa et se prolonge jusqu'à l'Afrique de l'Ouest (Janicot et al. 2008). Il se renforce pendant la saison de la mousson en juillet et en août et sa vitesse peut atteindre 14m/s. Son intensité diminue à partir de septembre. La figure 1.4 illustre les champs de vents calculés par le CEPMMT à 200hPa et le TEJ.

## 1.2 Généralités sur l’ozone dans l’atmosphère.

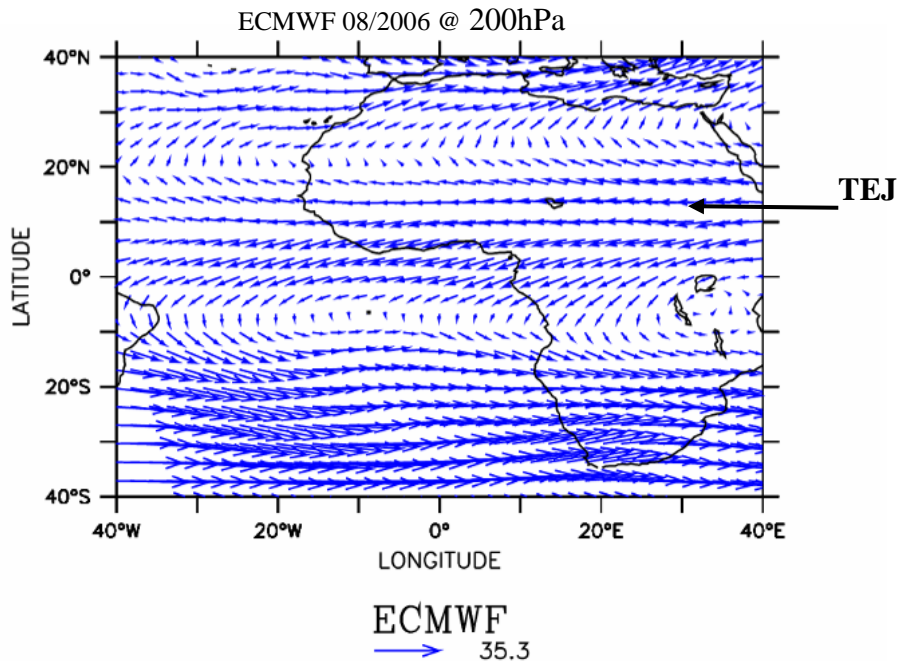


FIG. 1.4 - Circulation moyenne des vents (vecteurs bleu) (m/s) à 200hPa en août 2006 calculés par le CEPMMT.

## 1.2 Généralités sur l’ozone dans l’atmosphère

Depuis plusieurs années, la communauté scientifique porte un intérêt accru à l’ozone et à sa distribution dans l’atmosphère. Les diminutions de la teneur en ozone dans la stratosphère sont en effet susceptibles de conséquences néfastes sur la vie terrestre, puisque l’ozone stratosphérique est le principal protecteur contre les rayons solaires ultraviolets néfastes à la santé humaine.

Dans la troposphère, l’ozone est par contre un polluant et joue un rôle important sur le climat en tant que gaz à effet de serre. Au delà d’une certaine concentration, l’ozone peut causer des perturbations de la fonction respiratoire et endommager la végétation. La production excessive de précurseurs de l’ozone est à l’origine d’épisodes de pics de pollution dans la troposphère.

### 1.2.1 Les principaux précurseurs de l’ozone

L’ozone est produit par des réactions chimiques faisant intervenir des polluants primaires émis directement dans l’atmosphère. Cette section est consacrée aux principaux précurseurs de l’ozone: les composés azotés, le monoxyde de carbone et les composés organiques volatiles.

### 1.2.1.1 Les composés azotés

Les oxydes d'azote  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO}$  et  $\text{NO}_2$ ) sont principalement émis sous forme de monoxyde d'azote  $\text{NO}$ . La conversion en dioxyde d'azote  $\text{NO}_2$  se produit rapidement après l'émission de  $\text{NO}$ . Un équilibre photochimique se crée donc entre les deux espèces et c'est la raison pour laquelle on les regroupe souvent sous le terme  $\text{NO}_x$ . Dans la troposphère, les principales sources de  $\text{NO}_x$  sont anthropiques (combustions fossiles et de la biomasse) (voir tableau 1.1). Des quantités importantes de  $\text{NO}_x$  sont également émises par les avions et les bateaux notamment dans l'hémisphère nord. Les sources naturelles de  $\text{NO}_x$  sont les émissions par les sols, les océans, les éclairs et les intrusions stratosphériques. Bien que la contribution de ces sources soit moins grande que les quantités émises par la combustion, elles ont néanmoins une importance considérable. La production des  $\text{NO}_x$  dans les éclairs influence en effet considérablement la composition chimique de la haute et la moyenne troposphère dans certaines régions caractérisées par de forts épisodes d'orages comme dans les tropiques.

Les oxydes d'azote ont une durée de vie allant de quelques heures dans la couche limite à quelques jours dans la haute troposphère. Étant donné leur courte durée de vie, leur distribution permet de localiser les régions d'émissions. Les  $\text{NO}_x$  sont assez réactifs et sont principalement détruits par réaction chimique.

Sous le terme de  $\text{NO}_y$  sont regroupés les  $\text{NO}_x$  et d'autres espèces qui permettent de régénérer les  $\text{NO}_x$ . Ces espèces sont principalement l'acide nitrique ( $\text{HNO}_3$ ) et le peroxy acétyle nitrate (PAN,  $\text{CH}_3\text{COO}_2\text{NO}_2$ ) et sont considérés comme des réservoirs de  $\text{NO}_x$ . D'autres espèces telles que  $\text{NO}_3$ ,  $\text{HNO}_4$  et  $\text{N}_2\text{O}_5$  sont également regroupées dans le terme  $\text{NO}_y$ .

Emissions	Type	Tg(N)/an
Naturelles	Sols	5.6
	Eclairs	5.0
	Stratosphère	<0.5
Anthropiques	Fuel fossile et domestique	33.0
	Avions	0.7
Feux de biomasse		7.1
Total		51.9

TAB. 1.1 – Emissions de  $\text{NO}_x$  en Tg(N)/an, selon l'estimation IPCC (2001).

### 1.2.1.2 Le monoxyde de carbone (CO)

Le CO provient principalement de la combustion incomplète de combustibles fossiles (bois, hydrocarbures, charbon) ou des matières organiques (voir tableau 1.2). La combustion des matières organiques se produit dans les feux de biomasse. Cette source sera abordée plus en détail dans une prochaine section. L'oxydation du méthane

## 1.2 Généralités sur l'ozone dans l'atmosphère.

(CH<sub>4</sub>) et des Composés Organiques Volatiles (COVs) conduit également à la production de quantités importantes de CO. Le CO est également émis naturellement par la végétation, les océans et les sols mais les quantités émises sont faibles en comparaison aux quantités émises par la combustion ou par l'oxydation de CH<sub>4</sub> et des COVs.

Les principales sources d'émissions de CO sont liées à l'activité humaine et se situent dans l'hémisphère nord et dans les tropiques. Cependant, étant donné la durée de vie de CO qui est assez longue (jusqu'à 3 mois en moyenne), les processus de transport dans l'atmosphère favorisent la redistribution vers d'autres régions. La destruction de CO s'effectue par l'oxydation par les radicaux OH (R3& R4, section 1.2.2.1). L'absorption au sol est également un puit de CO. Le cycle d'oxydation de CO dépend des niveaux de NO<sub>x</sub>. Dans les régions polluées l'oxydation de CO conduit à la production d'O<sub>3</sub>. Dans des régions non polluées par contre, l'oxydation de CO a tendance à détruire l'O<sub>3</sub>.

<b>Emissions de CO</b>	<b>Tg(CO)/an</b>
Oxydation de CH <sub>4</sub>	800
Oxydation des VOCs biogéniques	700
Oxydation de l'acétone	20
Oxydation des VOCs industriels	110
Oxydation des VOCs issus des feux de biomasse	30
Végétation	150
Océan	50
Feux de biomasse	700
Fuel fossile et domestique	650
<b>TOTAL</b>	<b>2780</b>

TAB. 1.2 – Emissions de CO en Tg(CO)/an, selon l'estimation IPCC (2001).

### 1.2.1.3 Les composés organiques volatiles (COVs)

Les COVs ont des sources naturelles et anthropiques. L'isoprène (C<sub>5</sub>H<sub>8</sub>) et les terpènes (C<sub>10</sub>H<sub>16</sub>) représentent la plus grande fraction des COVs produits naturellement par la végétation. Les sources anthropiques des COVs résultent principalement de la combustion de la biomasse et des combustibles fossiles. Les émissions anthropiques sont néanmoins moins importantes que les émissions naturelles et sont principalement situées dans l'hémisphère nord.

La destruction des COVs s'effectue par des réactions avec l'ozone ou par oxydation par les radicaux OH.

### 1.2.2 Sources et puits de l'ozone troposphérique

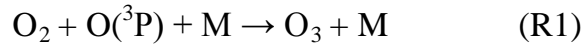
De nombreuses réactions chimiques plus ou moins complexes interviennent dans les phénomènes de production et de destruction de l'ozone troposphérique. Seules les principales réactions seront présentées dans cette section. De nombreux articles et



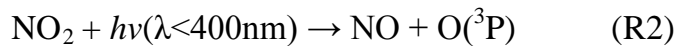
ouvrages traitent d'une façon détaillée de l'ozone troposphérique (Seinfeld and Pandis, 1998 ; Brasseur et al., 1999).

### 1.2.2.1 La production photochimique de l'O<sub>3</sub>

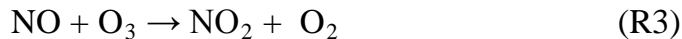
La production photochimique d' O<sub>3</sub> dans la troposphère résulte de la réaction entre un atome d'oxygène O(<sup>3</sup>P) et une molécule d'oxygène O<sub>2</sub> en présence d'un troisième corps qui stabilise les produits de la réaction :



L'atome d'oxygène est produit par photodissociation de NO<sub>2</sub> :

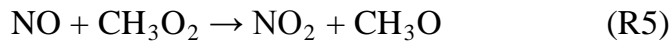


Le NO formé par cette réaction est converti rapidement en NO<sub>2</sub> par une réaction avec O<sub>3</sub> :



Ces trois réactions conduisent donc à un équilibre chimique entre l'O<sub>3</sub> et les NO<sub>x</sub>. Ainsi, pour une production nette d'O<sub>3</sub>, il faudra que la conversion de NO en NO<sub>2</sub> fasse intervenir d'autres espèces que l'O<sub>3</sub>. Ces espèces sont les radicaux peroxyde HO<sub>2</sub>, CH<sub>3</sub>O<sub>2</sub> et RO<sub>2</sub> (R=C<sub>2</sub>H<sub>5</sub> ou un autre groupe organique supérieur), produits par l'oxydation de CO, CH<sub>4</sub> et des COVs par le radical OH.

Les réactions permettant une production nette de l'ozone sont donc :

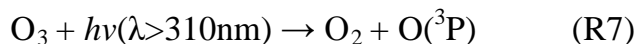


Les réactions entre NO et les radicaux peroxyde ne se produisent cependant que lorsque les concentrations de NO<sub>x</sub> sont supérieures à un niveau critique d'environ 10-20 pptv. Dans le cas où les concentrations de NO<sub>x</sub> sont faibles, les radicaux peroxyde conduisent à la destruction d'O<sub>3</sub>. Le radical OH joue donc un rôle primordial dans le cycle de production de l'ozone en tant que principal oxydant. Les mécanismes d'oxydation dans la troposphère seront abordés plus en détail dans les prochaines sections.

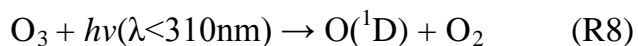
### 1.2.2.2 Destruction photochimique d'O<sub>3</sub>

La destruction de l'ozone dans la troposphère se produit par des réactions photolytiques dans plusieurs domaines spectraux. Les rayonnements de longueur d'onde au dessus de 310 nm conduisent à la photolyse de l'O<sub>3</sub> et à la formation de O(<sup>3</sup>P) (R7). L'ozone est cependant recomposé immédiatement par la réaction R1.

## 1.2 Généralités sur l’ozone dans l’atmosphère.



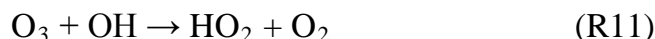
En dessous de 310 nm, la photolyse de l’ozone conduit à la formation de  $\text{O}({}^1\text{D})$  qui peut réagir avec la vapeur d’eau pour former OH (R8, R9).



La destruction de l’ozone dans l’atmosphère se produit également par des réactions chimiques. Ainsi, lorsque les concentrations de  $\text{NO}_x$  sont inférieures au niveau 10-20 pptv, les radicaux peroxyde, produits par l’oxydation de CO,  $\text{CH}_4$  et des COVs par OH, peuvent réagir avec l’ $\text{O}_3$  (R10) plutôt qu’avec NO (R4, R5, R6).



Cependant, lorsque les concentrations de  $\text{NO}_x$  sont très importantes, notamment dans les centres villes, il peut y avoir aussi une destruction de l’ozone (R3). En effet, les quantités de l’ozone produites photochimiquement sont moins importantes que les quantités consommées lors de la conversion de NO en  $\text{NO}_2$ . Enfin, la destruction de l’ozone peut se produire également par réaction avec le radical OH pendant le jour :



### 1.2.3 La capacité oxydante de la troposphère

Les précurseurs de l’ozone décrits précédemment peuvent influencer considérablement le système climatique. Jusqu’à la période préindustrielle en général et aux dernières décennies en particulier, l’atmosphère, grâce à sa capacité oxydante, a « empêché » l’accumulation de polluants. L’atmosphère est dotée en effet d’un système « d’auto nettoyage ». Ce système conduit à la dissolution ou à l’absorption de certaines espèces chimiques grâce au dépôt sec et humide, ou fait intervenir d’autres espèces pour convertir des polluants en non-polluants comme le  $\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{O}_2$ .

Dans le cas du dépôt sec, des espèces chimiques sont absorbées par la végétation, par l’eau ou le sol. Cependant, le dépôt sec se produit principalement dans la couche limite. Le dépôt humide se produit grâce aux précipitations et concerne uniquement les espèces chimiques solubles dans l’eau.

La capacité oxydante de la troposphère a été découverte dans les années 70. Pressman et Warneck (1970) avaient noté que malgré l’augmentation des émissions de CO dans les années 50 et 60, il n’y avait pas eu de répercussion considérable sur les concentrations dans la troposphère. Levy et al. (1971) a montré la formation des radicaux OH dans la troposphère et a suggéré leur rôle dans la destruction de CO. Depuis, plusieurs autres oxydants ont été découvert et les plus importants sont OH (radical hydroxyle),  $\text{NO}_3$  (radical nitrate),  $\text{HO}_2$  (radicaux hydro peroxyde) et  $\text{RO}_2$  (radicaux peroxyde,  $\text{R}=\text{C}_2\text{H}_5$  ou autre groupe organique supérieur) et  $\text{H}_2\text{O}_2$  (peroxyde d’hydrogène). Ces oxydants influencent la durée de vie et les concentrations de

nombreuses espèces chimiques dans l'atmosphère. Inversement, les concentrations des gaz traces influencent les concentrations des oxydants. L'augmentation des émissions conduit en effet globalement à une diminution des oxydants.

### **1.3 Sources d'émissions en Afrique**

L'objectif de cette section est de donner une description des principales sources d'émissions de précurseurs de l'ozone en Afrique équatoriale. Ces sources sont principalement liées aux émissions urbaines dans les mégacités africaines, à l'industrie pétrolière et à la combustion de la biomasse. La densité de la couverture végétale et les grands orages qui caractérisent les régions tropicales en général et l'Afrique équatoriale en particulier influencent également le bilan chimique de cette région respectivement par les émissions biogéniques de précurseurs de l'ozone et par des émissions de  $\text{NO}_x$  par les éclairs.

Les flux d'émissions donnés dans les figures de cette section proviennent du cadastre d'émissions AMMA, présenté dans la section 1.5, utilisé dans ce travail de thèse.

#### **1.3.1 Les sources anthropiques**

##### **1.3.1.1 Combustion des combustibles fossiles**

La croissance démographique accrue que connaissent certains pays africains ces dernières années a conduit à l'amplification du phénomène d'urbanisation. Cette surpopulation est également à l'origine de la création des mégacités. Par conséquence, les besoins en moyens de transport urbains dans ces grandes villes ont sensiblement évolué. Cependant, les difficultés économiques de ces pays ont conduit à des politiques qui ont généré des dysfonctionnements dans les systèmes de transport. Cela a conduit notamment à l'accroissement de l'importation de véhicules d'occasion âgés et à l'utilisation de véhicules individuels tels que les cyclomoteurs. Ces différents éléments ont pour conséquence une augmentation des émissions de polluants. Les concentrations de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ...etc. atteignent parfois des seuils qui peuvent avoir un impact sur les plans sanitaires et environnemental. Sachant que l'Afrique est caractérisée par les phénomènes de convection profonde, les émissions locales de polluants dans certaines mégacités peuvent être injectées rapidement en dehors des basses couches et affecter ainsi significativement la composition chimique de la troposphère.

La figure 1.5 montre les flux d'émissions de  $\text{CO}$  et de  $\text{NO}_x$  par la combustion des combustibles fossiles en Afrique dans l'inventaire d'émissions RETRO2000 (<http://www.retro.enes.org>) (voir section 1.5). La distribution de ces émissions indique que les régions les plus polluées en Afrique sont près des côtes Guinéennes (le Nigeria en particulier), où l'activité pétrolière est importante, et dans les régions de l'Afrique de l'Est et de l'Afrique du Sud où il y a une forte urbanisation et densité de la population.

### 1.3 Sources d'émissions en Afrique.

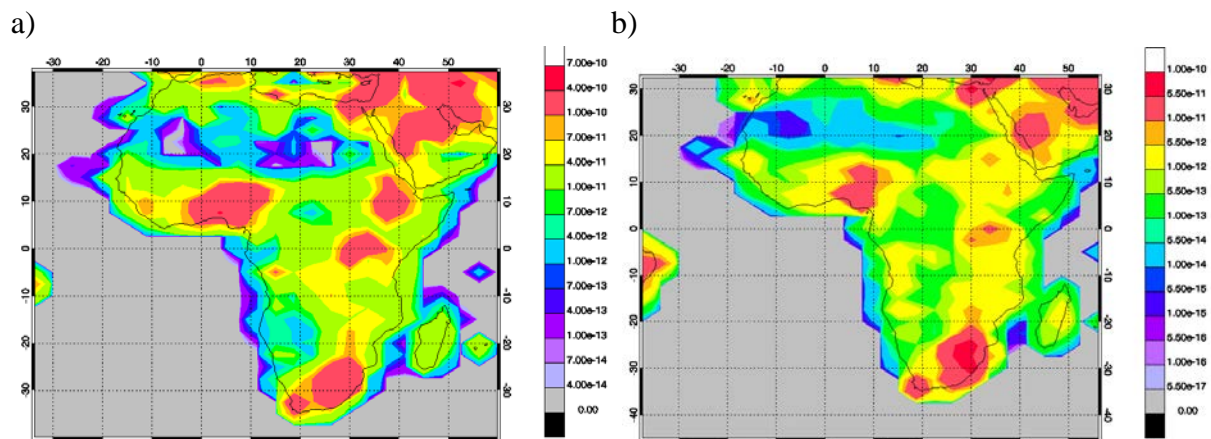


FIG. 1.5 – Flux d'émissions de CO [ $\text{kg (CO)/m}^2/\text{s}$ ] (a) et de  $\text{NO}_x$  [ $\text{kg (N)/m}^2/\text{an}$ ] (b) par la combustion des combustibles fossiles en Afrique. Emissions de l'inventaire RETRO2000 (voir section 1.5).

#### 1.3.1.2 Combustion de la biomasse

Les feux de biomasse sont très répandus dans les régions tropicales notamment en Afrique. Le brûlage de la végétation a en effet une importance vitale pour de nombreuses populations qui utilisent cette pratique pour leurs besoins en énergie domestique (cuisine, chauffage par l'utilisation du bois) et pour cultiver leurs terres. Ainsi, le brûlage pendant la saison sèche permet de nettoyer et renouveler les pâturages. Il permet également le défrichement de nouvelles terres cultivables.

De nombreuses études concernant l'impact des émissions de la combustion de la biomasse sur la chimie de la troposphère ont été menées. La production photochimique de l'ozone par les émissions des feux de biomasse à l'échelle globale atteindrait 19% selon Granier et al. (1996) et 20% selon Crutzen and Andreae (1990). La période des feux de biomasse en Afrique correspond à la saison sèche dans chaque hémisphère. Au nord de l'équateur les feux de biomasse se produisent pendant l'hiver boréal entre novembre et mars. Pendant la saison de la mousson entre avril et septembre, ce sont les régions au sud de l'équateur qui sont dans la saison sèche et les feux de biomasse sont localisés dans ces régions. La figure 1.6, montre les flux d'émissions de CO par les feux de biomasse en Afrique en janvier et en août 2006 (cadastre d'émissions AMMA, voir section 1.5). En janvier, les émissions maximales de CO par les feux de biomasse se trouvent au sud du Sahel entre  $5^\circ\text{N}$  et  $15^\circ\text{N}$ . Des émissions élevées sont localisées entre le Nigeria et l'Ethiopie. En août, les émissions des feux de biomasse sont localisées dans l'hémisphère sud en Afrique centrale.

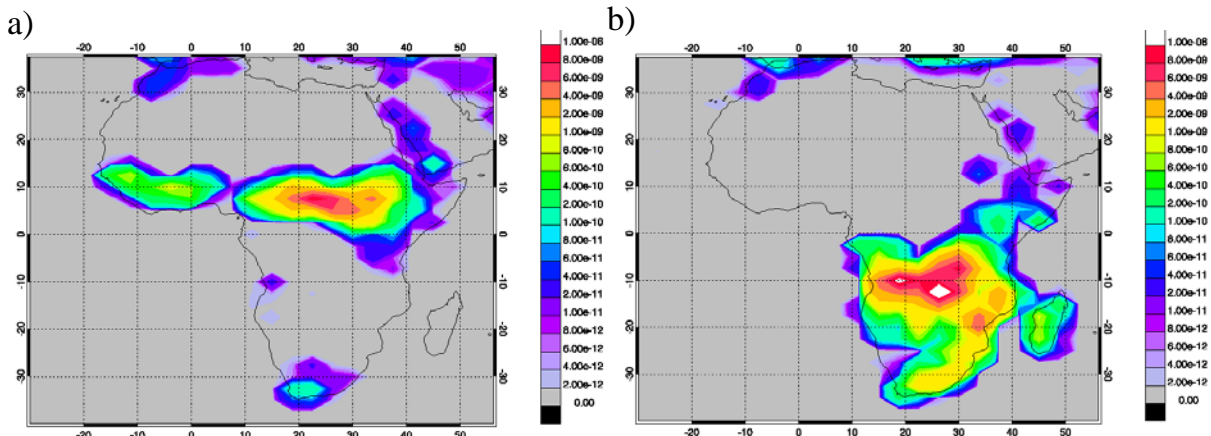


FIG. 1.6 – Flux d'émissions de CO [ $\text{kg}(\text{CO})/\text{m}^2/\text{s}$ ] par les feux de biomasse en Afrique en janvier (a) et en août (b) 2006. Cadastre démissions AMMA (voir section 1.5).

### 1.3.2 Les émissions biogéniques

Les émissions biogéniques sont issues soit directement de la végétation, soit des sols suite à la dégradation de matières organiques. La végétation permet de produire une large variété de composés organiques volatiles (COVs) (Kesselmeier et Staudt, 1999). Les émissions d'isoprène ( $\text{C}_5\text{H}_8$ ) dominent la production des COVs par la végétation (Fehsenfeld et al., 1992 ; Guenther et al., 1995). Les terpènes et le méthanol ( $\text{CH}_3\text{OH}$ ) sont également émis en quantités importantes par la végétation. La répartition de la végétation en Afrique équatoriale (figure 1.7) indique une large densité des forêts et de la savane dans les régions proches du Golfe de Guinée et en Afrique centrale dans le bassin du Congo. Ces régions peuvent ainsi être des sources importantes d'émissions de COVs.

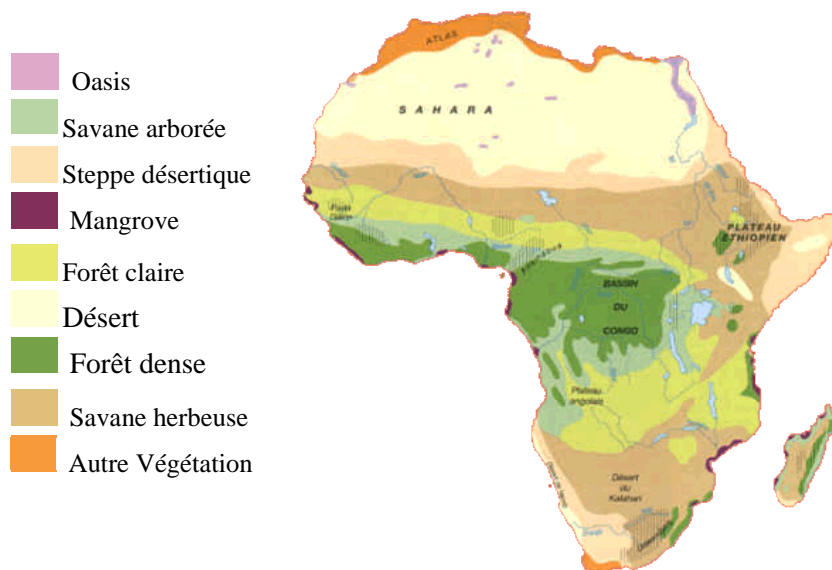


FIG. 1.7 - Répartition géographique des types de végétation en Afrique.

### 1.3 Sources d'émissions en Afrique.

La figure 1.8 représente les flux d'émissions biogéniques d'isoprène en Afrique en janvier et en août 2006 (d'après Lathière et al., 2005). Les fortes émissions d'isoprènes sont localisées en Afrique de l'Ouest et dans le bassin du Congo. Il y a donc une adéquation entre les régions boisées et les flux élevés d'émissions d'isoprène.

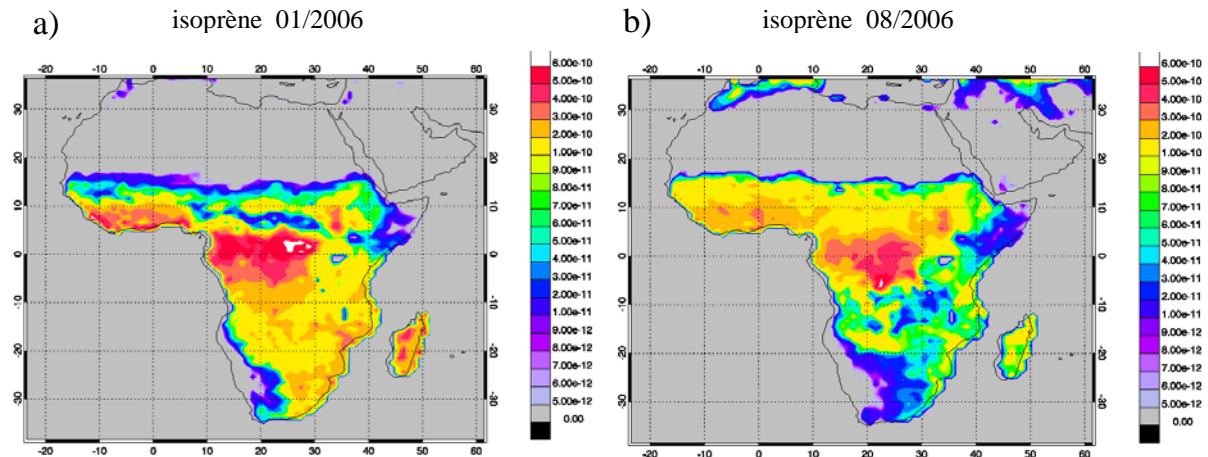


FIG. 1.8 – Flux d'émissions biogéniques d'isoprène [kg (C)/m<sup>2</sup>/s] en Afrique en janvier (a) et en août (b) 2006 (d'après Lathière et al., 2005).

Les sols sont aussi une source significative pour le méthane (CH<sub>4</sub>), le monoxyde d'azote (NO) et le peroxyde d'azote (N<sub>2</sub>O). La figure 1.9 montre les flux d'émissions de NO par les sols en Afrique en janvier et en août 2006, calculés par Yienger and Levy (1995). D'importantes quantités de NO sont émises en Afrique de l'Ouest et en Afrique centrale en janvier. En août, pendant la saison humide, les émissions maximales de NO sont localisées au Sahel et dans le bassin du Congo. Les régions du Sahel sont pauvres en couverture végétale (principalement des steppes boisées ou des savanes herbeuses). L'arrivée des pluies dans ces régions pendant la saison de la mousson peut accroître l'activité biologique et bactérienne dans les sols (Jaeglé et al., 2005). Ces régions émettent ainsi des quantités importantes de NO. Les caractéristiques de la couverture végétale en Afrique de l'Ouest indiquent ainsi que les émissions biogéniques sont une source importante de précurseurs de l'ozone dans cette région notamment pendant la saison humide.



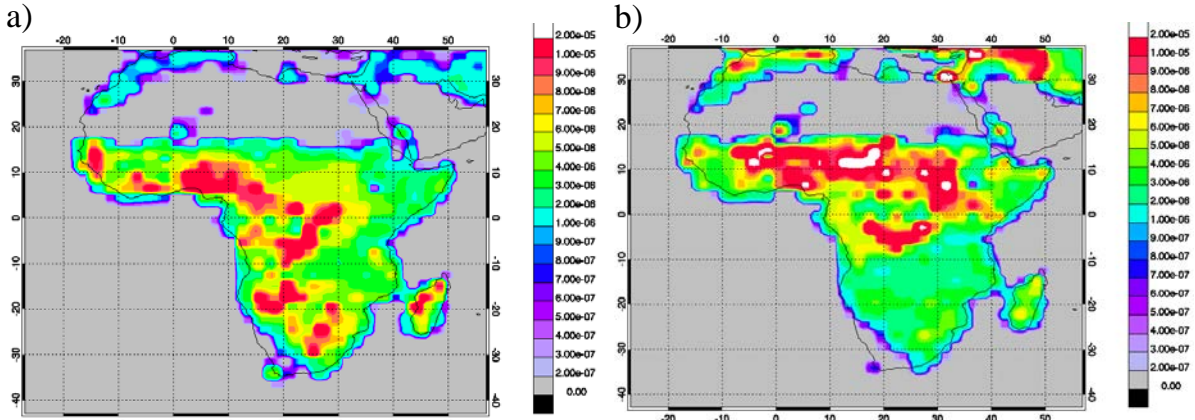


FIG. 1.9 – Flux d'émissions de NO [kg (N)/m<sup>2</sup>/mois] par les sols en Afrique en janvier (a) et en août (b) 2006 (d'après Yienger and Levy, 1995).

### 1.3.3 Emissions de NO<sub>x</sub> par les éclairs

Plusieurs études ont montré l'importance des NO<sub>x</sub> produits par les éclairs sur la chimie troposphérique (e.g. Labrador et al., 2005 ; Bond et al., 2002). Les NO<sub>x</sub> interviennent en effet dans plusieurs réactions chimiques (voir section 1.2, réactions R2, R3, R4, R5 et R6) et leur disponibilité affecte considérablement les concentrations de l'ozone.

L'Afrique équatoriale, comme dans les autres régions tropicales, est caractérisée par une importante activité orageuse source des éclairs. La climatologie de la distribution des éclairs (figure 1.10) observés par les instruments OTD/LIS (<http://thunder.nsstc.nasa.gov/index.html>) entre 1995 et 2005 montre que la fréquence des éclairs augmente pendant les saisons humides de chaque hémisphère. Ainsi, en janvier des fréquences importantes d'éclairs ont été observées en Afrique centrale. Des quantités importantes ont été observées également dans l'hémisphère nord pendant la saison de la mousson en août.

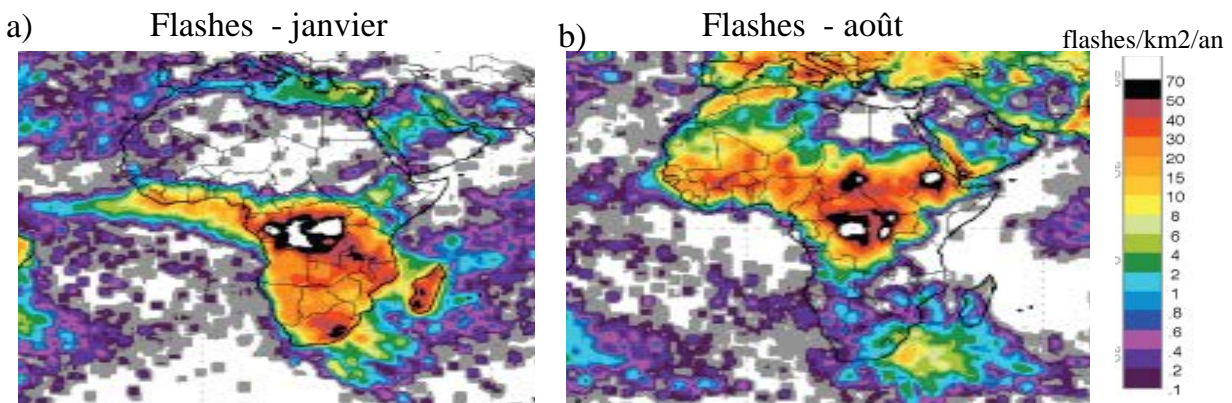


FIG. 1.10 - Climatologie (1995-2005) des fréquences des éclairs (flashes/km<sup>2</sup>/an) observées par les instruments OTD & LIS (<http://thunder.nsstc.nasa.gov/index.html>) en janvier (a) et en août (b).

## **1.4 AMMA – Un projet de recherche sur la mousson africaine**

Cette section présente les motivations de la communauté scientifique internationale pour l'étude et la compréhension de la mousson en Afrique de l'Ouest, qui ont conduit à la création et à la réalisation du projet AMMA (Analyses Multidisciplinaires de la Mousson Africaine). Cette section présente aussi les données utilisées pour réaliser les études présentées aux chapitres 3, 4 et 5. Ces données sont les mesures chimiques collectées pendant la campagne d'observations AMMA en été 2006, et les données additionnelles disponibles (sondages de l'ozone à Cotonou et données du programme MOZAIC).

### **1.4.1 Historique, motivations et objectifs principaux du projet AMMA**

Les pluies en Afrique de l'Ouest sont caractérisées par une variabilité importante et irrégulière depuis les années 50s : abondantes pendant les années 50s et 60s, des périodes de grande sécheresse ont ensuite été observées dans toute l'Afrique de l'Ouest entre les années 70s et 90s. Les années extrêmement sèches ont eu des impacts environnementaux et socio-économiques importants : dégradation du sol, sécurité alimentaire et en eau dans cette région. Le manque rapide des ressources en eau a été dramatique pour la population, essentiellement dépendante de l'agriculture, et pour l'économie des pays Ouest-Africains. Des usines ont dû fermer pendant plusieurs années et la production agricole a fortement diminué. La croissance économique de certains pays a été très affectée.

Les famines au Sahel pendant les années 70s et 80s ont motivé plusieurs chercheurs pour étudier et évaluer les mécanismes physiques de cette variabilité des précipitations de manière à améliorer la prévision saisonnière. La mousson Ouest-Africaine a été désignée comme l'un des facteurs climatiques de contrôle de la variabilité des précipitations. Des études de modélisation (e.g. Semazzi et al., 1996 ; Semazzi et Sun, 1997 ; Wang et Eltahir, 2000) ont montré que d'autres facteurs, tels que la couverture végétale, la topographie et les océans, jouent également un rôle important sur la dynamique atmosphérique et l'établissement de la circulation de la mousson sur l'Afrique de l'Ouest. L'activité humaine est un facteur non négligeable de contrôle de la pluviométrie. D'après Zhang et Eltahir (1998), en effet, une diminution de la couverture végétale sur la région Soudano-Guinéenne peut avoir une influence non négligeable sur les précipitations de cette région.

Au rôle important de l'Afrique de l'Ouest sur le système climatique de la terre s'ajoute un rôle important sur la chimie de l'atmosphère. La section précédente a montré que l'Afrique équatoriale est une source importante de précurseurs de l'ozone. Les feux de savane et des écosystèmes forestiers, les éclairs, l'activité humaine produisent des quantités importantes de gaz réactifs et de particules qui affectent le bilan chimique de la troposphère et le bilan radiatif à l'échelle régionale. Le transport à grande échelle de ces émissions peut également influencer la composition chimique d'autres régions de la planète.



C'est pour comprendre les mécanismes de la mousson Africaine que le projet AMMA a été construit par un groupe international de scientifiques. Les objectifs définis pour ce projet sont :

- Améliorer notre compréhension de la mousson d'Afrique de l'Ouest et de son impact sur l'environnement physique, chimique et biologique à l'échelle régionale et globale ;
- Fournir les connaissances scientifiques de base qui permettront d'établir les liens entre la variabilité climatique et les problèmes de santé, de ressources en eau et de sécurité alimentaire ainsi que de définir des stratégies de surveillance appropriées ;
- Veiller à ce que cette recherche multidisciplinaire réalisée au sein d'AMMA bénéficie aux activités de prévision et de prise de décision.

#### **1.4.2 La campagne AMMA en été 2006**

Le programme de mesures AMMA est constitué de plusieurs périodes d'observations (e.g. période d'observation à long terme, période d'observation spéciale) définies dans un plan scientifique international ([http://amma-international.org/library/docs/AMMA\\_ISP\\_May2005.pdf](http://amma-international.org/library/docs/AMMA_ISP_May2005.pdf)). Les données AMMA utilisées dans cette thèse ont été mesurées pendant la période d'observation spéciale (SOP2/Special Observation periode, en anglais) en juillet et en août 2006. Pendant cette période, cinq avions de recherche (B\_146, ATR, Falcon Français F\_F20, Falcon Allemand D\_F20, Geophysica M55) provenant de différents pays (France, Allemagne, Angleterre et Russie) ont été utilisés afin d'acquérir des informations sur les propriétés physico-chimiques de la troposphère et de la basse stratosphère au dessus de l'Afrique de l'Ouest. Certains avions ont effectué des mesures dans les basses et moyennes couches de l'atmosphère (ATR, B\_146), d'autres ont pu voler à des altitudes plus hautes de la troposphère (F\_F20, D\_F20) et jusqu'à la basse stratosphère (M55). Les vols ont été effectués principalement dans la région 2°N-20°N et 10°W-7°E (figure 1.11). Les mesures des avions permettent ainsi de caractériser la composition chimique de toute la troposphère en Afrique de l'Ouest.

#### 1.4 AMMA – Un projet de recherche sur la mousson africaine.

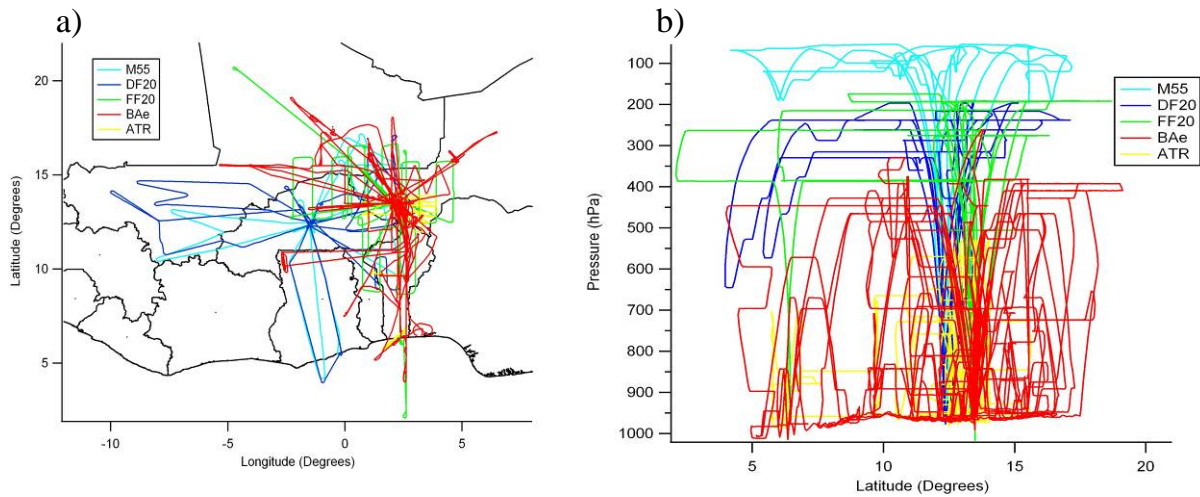


FIG. 1.11 – Trajectoires des avions (a) M55, D\_F20, F\_F20, B\_146 et ATR pendant la période d'observation spéciale SOP2 en juillet et en août 2006 (Reeves et al., 2010) ; Altitudes des vols des avions en fonction de la latitude (b).

Les avions AMMA ont été équipés de plusieurs instruments qui ont permis de mesurer l'ozone et plusieurs de ses précurseurs (e.g. CO, NO<sub>x</sub>, COVs) ainsi que des aérosols. Le tableau 1.3 montre une liste des principales espèces chimiques mesurées par chaque avion et utilisées dans cette thèse. Une description détaillée des plans de vols des cinq avions ainsi que des instruments de mesures est donnée par Reeves et al. (2010).

	ATR	B_146	F_F20	D_F20	M55
O <sub>3</sub>	x	x	x	X	x
CO	x	x	x	X	x
NO		x		X	x
NO <sub>2</sub>		x			
NO <sub>y</sub>				X	x
HCHO		x		X	
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>			x		
isoprène		x			

TAB. 1.3 – Principales espèces chimiques mesurées par les avions AMMA et utilisées dans cette thèse.

### 1.4.3 Observations MOZAIC

Dans le cadre du programme MOZAIC (Measurement of OZone and water vapour by Airbus In-service airCRAFT) (Marenco et al., 1998), nous disposons de mesures additionnelles de CO et d'O<sub>3</sub> mesurées en juillet et en août 2006. Ces mesures ont été effectuées chaque jour le long des vols entre Windhoek en Namibie (22.5°S, 17.5°E) et Frankfurt en Allemagne (50°N, 8.6°E) d'une part, Londres (51.15°N, 0.19°W) d'autre part. La figure 1.12 montre les trajectoires de vol des avions MOZAIC. Les données MOZAIC sont intéressantes dans la mesure où elles ont été mesurées au dessus de la région des feux de biomasse en Afrique centrale et au dessus de l'Afrique de l'Ouest. Ces données vont donc apporter des informations complémentaires pour caractériser la distribution d'O<sub>3</sub> et de CO dans la haute troposphère.

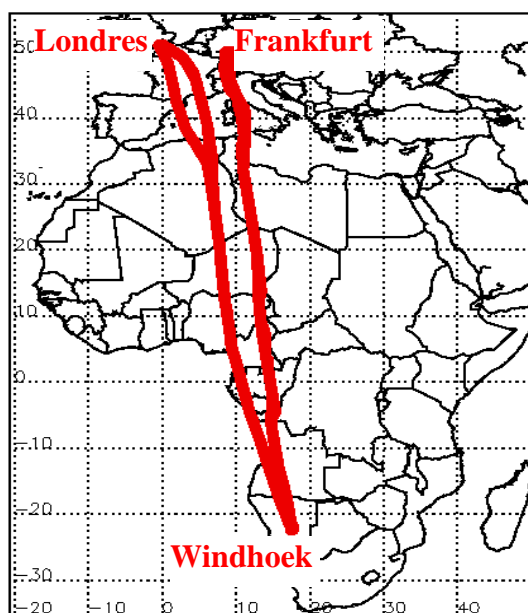


FIG. 1.12 – Trajectoires de vol des avions MOZAIC en juillet et août 2006 entre Windhoek (22.5°S, 17.5°E) et Frankfurt en Allemagne (50°N, 8.6°E) et entre Windhoek et Londres (51.15°N, 0.19°W).

Les mesures aéroportées de la campagne AMMA sont utilisées aux chapitres 3, 4 et 5 pour analyser la composition chimique de la troposphère en Afrique de l'Ouest. En plus de ces mesures et des données MOZAIC, des sondages de l'ozone (22 sondages) ont été effectués aussi dans le cadre du projet AMMA à Cotonou (Bénin) (Thouret et al., 2009, en préparation) entre juin et août 2006. Ces données sont également utilisées dans l'étude de l'influence des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale, présentée au chapitre 4.

## 1.5 Cadastres d'émissions utilisés

Comme il a été indiqué dans les parties 1.2 et 1.3, les émissions chimiques africaines jouent un rôle important sur le bilan de l'ozone. Celles liées aux feux de la biomasse en particulier sont relativement incertaines et ont été réévaluées dans le cadre du projet AMMA. Cette section présente les nouveaux cadastres d'émissions propres au projet AMMA et d'autres émissions utilisées en comparaison. Ces deux cadastres d'émissions, que nous désignerons par AMMA et WERF tout au long de cette thèse, ont été utilisés pour la simulation du modèle global LMDz-INCA (Hauglustaine et al., 2004 ; Folberth et al., 2006), décrit au chapitre 2. Le tableau 1.4 montre les jeux de données qui caractérisent chaque cadastre.

Dans le cadastre WERF, les émissions de surface par les feux de biomasse pour l'année 2006 sont basées sur l'inventaire GFED (van der Werf et al., 2006). Les flux d'émissions (e.g. CO, NO<sub>x</sub>) sont estimés en utilisant les observations des surfaces brûlées par le satellite MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) (Giglio et al., 2006). Les facteurs d'émissions donnés par Andreae and Merlet (2001) ont été utilisés ensuite pour calculer les flux d'émissions des COVs par les feux de biomasse. Les émissions anthropiques (industrie, rejets urbains) sont basées sur l'inventaire EDGAR v3.2 (Olivier and Berndowski, 2001). Les émissions anthropiques de COVs sont basées sur l'inventaire EDGAR v2.0 (Olivier et al., 2001). Les émissions EDGAR sont représentatives de l'année 1995. Les émissions de NO<sub>x</sub> par les bateaux, calculées par Corbett et al. (1999) ont également été considérées. La base de données GEIA (Global Emission Inventory Activity) (<http://www.geiacenter.org>) a été utilisée pour introduire les émissions biogéniques.

La particularité du cadastre d'émissions AMMA consiste en l'utilisation d'émissions des feux de biomasse et d'émissions anthropiques en Afrique, spécialement développées dans le cadre du projet AMMA pour l'année 2006 (Lioussé et al., 2010). Les flux d'émissions par les feux de biomasse sont estimés en utilisant les données de surfaces brûlées du satellite SPOT-VEGETATION (Michel et al., 2005). En dehors du continent Africain, les émissions par les feux de biomasse et les émissions anthropiques utilisées sont basées respectivement sur les inventaires GFED (van der Werf et al., 2006) et RETRO (pour l'année 2000) (<http://www.retro.enes.org>). Les émissions biogéniques d'isoprène, méthanol, terpènes et d'acétone ont été préparées par le modèle global de végétation ORCHIDEE (Organizing Carbon and Hydrology in Dynamic Ecosystems) (Krinner et al., 2005). Une description et une évaluation détaillées des émissions de ce modèle ont été effectuées par Lathière et al. (2005, 2006). La base de données GEIA a été utilisée pour introduire les autres émissions biogéniques (e.g. émissions océaniques, autres COVs biogéniques). Les émissions de NO<sub>x</sub> par les bateaux sont basées sur l'inventaire RETRO.

Les émissions de NO<sub>x</sub> par les sols, par les avions et par les éclairs dans les deux cadastres WERF et AMMA sont basées respectivement sur les inventaires de Yienger and Levy (1995), Gardner et al. (1998) et Jourdain and Hauglustaine (2001).

Emissions	WERF	AMMA
<b>Feux de biomasse</b>	GFED (van der Werf et al., 2006)	- Liousse et al. (2010) en Afrique - GFED (van der Werf et al., 2006) en dehors de l'Afrique
<b>Anthropiques</b>	EDGAR v2.0 et v3.2 (Olivier and Berdowski, 2001; Olivier et al., 1996) Corbett et al. (1999)	- Liousse et al. (2010) en Afrique - RETRO2000 en dehors de l'Afrique
<b>Biogéniques</b>	GEIA	Lathière et al. (2005, 2006) GEIA (émissions océaniques et autres COVs)
<b>NO<sub>x</sub> par les sols</b>	Yienger and Levy (1995)	Yienger and Levy (1995)
<b>NO<sub>x</sub> par les avions</b>	Gardner et al. (1998)	Gardner et al. (1998)
<b>NO<sub>x</sub> par les éclairs</b>	Jourdain and Hauglustaine (2001)	Jourdain and Hauglustaine (2001)

TAB. 1.4 – Différents inventaires d'émissions utilisés dans les cadastres d'émissions WERF et AMMA.

Le tableau 1.5 montre les quantités d'émissions totales et les quantités calculées en Afrique de CO, NO<sub>x</sub>, isoprène et des COVs (somme totale) dans les cadastres d'émissions WERF et AMMA. Les quantités d'émissions de CO dans le cadastre AMMA sont supérieures de 12% et 14% à celles du cadastre WERF, respectivement en quantité totale et en Afrique. Les quantités globales d'émissions de NO<sub>x</sub> dans le cadastre AMMA sont supérieures de 8% à celles de WERF. En Afrique, elles sont environ deux fois supérieures. Les quantités d'émissions d'isoprène sont inférieures de 17% dans l'inventaire AMMA en Afrique et de 8% en quantité totale. Les quantités totales des émissions des COVs en Afrique sont presque identiques dans les deux cadastres. En quantité totale, elles sont supérieures de 8.5% dans le cadastre AMMA.

Espèces	WERF	AMMA	AMMA-WERF
<b>CO</b> [Tg(CO)/an]	Globe: 1036,2	Globe: 1164.9	Globe: 128.7
	Afrique: 236	Afrique: 369	Afrique: 33
<b>NO<sub>x</sub></b> [Tg(N)/an]	Global: 39.45	Globe: 42.63	Globe: 3.18
	Afrique: 6.15	Afrique: 11.12	Afrique: 4.97
<b>Isoprène</b> [Tg(C)/an]	Globe: 502.5	Globe: 461.2	Globe: -41.3
	Afrique: 126.2	Afrique: 104.35	Afrique: -21.85
<b>COVs</b> [Tg(C)/an]	Globe: 850.5	Globe: 922.2	Globe: 72.3
	Afrique: 197.45	Afrique: 194.6	Afrique: -2.85

TAB. 1.5 – Quantités des émissions de CO (Tg(CO)/an), NO<sub>x</sub> (Tg(N)/an), isoprène (Tg(C)/an) et des COVs (Tg(C)/an), totales et calculées sur l'Afrique, dans les cadastres d'émissions WERF et AMMA. Différences absolues entre les quantités calculées (AMMA-WERF).

## 1.5 Cadastres d'émissions utilisés.

La figure 1.13 représente les différentes contributions aux quantités d'émissions globales de CO et de NO<sub>x</sub> dans les cadastres WERF et AMMA. Les quantités d'émissions de CO anthropiques (Anthro) et par les feux de biomasse (FB) sont supérieures de 19% et 34% respectivement dans le cadastre AMMA. Les autres contributions (Autre) qui correspondent aux émissions océaniques, combustion des déchets agricoles et combustion biofuel sont plus importantes dans le cadastre WERF (+30%). Les quantités d'émissions de NO<sub>x</sub> anthropiques et par les bateaux sont presque identiques dans les deux cadastres d'émissions. La contribution des feux de biomasse est plus importante dans le cadastre AMMA (+30%).

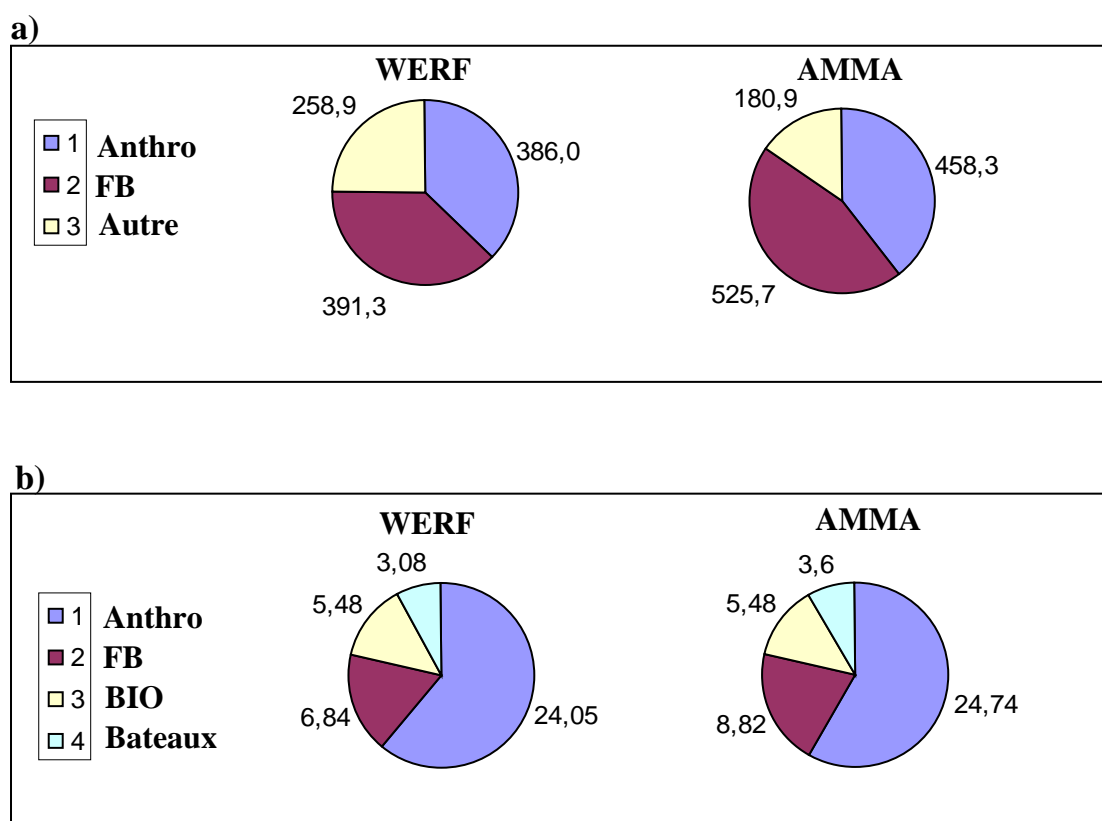


FIG. 1.13 – Différentes contributions aux émissions totales de CO (a) et NO<sub>x</sub> (b) dans les cadastres d'émissions WERF et AMMA. Contribution des émissions anthropiques (Anthro), feux de biomasse (FB), biogéniques (BIO), des bateaux et les autres contributions au CO (autre) qui correspondent aux émissions océaniques, combustion des déchets agricoles et combustion biofuel.

La figure 1.14 montre la distribution des émissions de CO et de NO<sub>x</sub> en Afrique en août 2006 dans les cadastres d'émissions AMMA et WERF. Les quantités d'émissions de CO en Afrique centrale, dont les valeurs élevées sont dues aux feux de biomasse, sont plus élevées dans l'inventaire AMMA. La distribution spatiale des émissions de CO est différente dans les deux cadastres. L'influence des émissions des feux de biomasse s'étend jusqu'à l'Afrique du Sud dans l'inventaire AMMA. En Afrique de l'Ouest, la distribution spatiale des émissions de CO est plus grande dans cet inventaire également et des quantités élevées sont émises jusqu'à 20°N. Les émissions de NO<sub>x</sub> sont également plus élevées et leur distribution spatiale est plus étendue dans l'inventaire AMMA. Des quantités plus élevées de NO<sub>x</sub> sont émises notamment en Afrique de l'Ouest, en Afrique centrale et en Afrique du Sud dans cet inventaire en comparaison avec l'inventaire WERF.

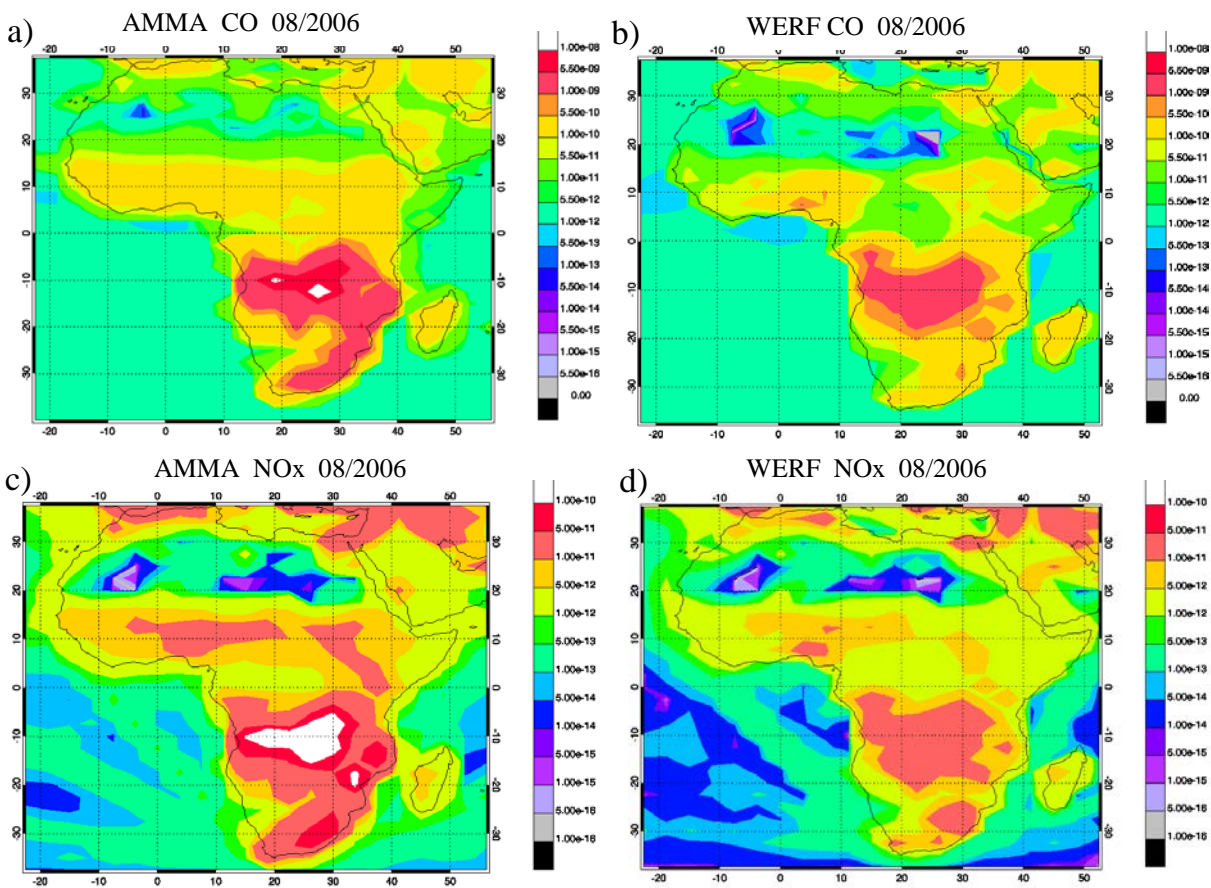


FIG. 1.14 – Flux d'émissions totales de CO [kg (CO)/m<sup>2</sup>/s] (a, b) et NO<sub>x</sub> [kg (N)/m<sup>2</sup>/s] (c, d) en Afrique en août 2006 dans les cadastres d'émissions AMMA (a, c) et WERF (b, d).



## 1.5 Cadastres d'émissions utilisés.

La figure 1.15 représente les flux d'émissions de HCHO en Afrique en août 2006 dans les cadastres d'émissions AMMA et WERF. Les quantités d'émissions de HCHO sont plus élevées dans l'inventaire AMMA au nord de l'équateur. En Afrique centrale, les quantités d'émissions de HCHO, dues aux feux de biomasse, sont plus élevées dans l'inventaire WERF.

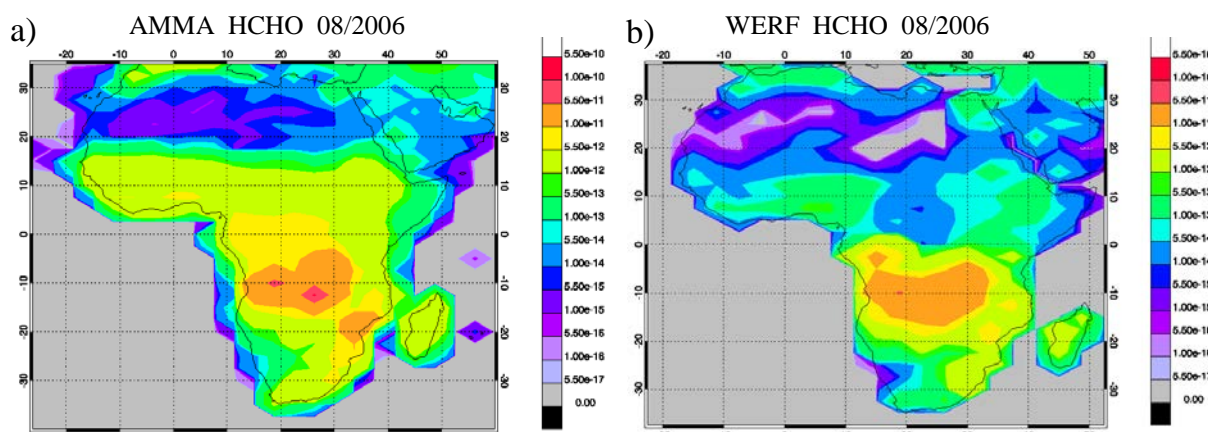


FIG. 1.15 – Flux d'émissions totales de HCHO [ $\text{Kg (C)/m}^2/\text{s}$ ] en Afrique en août 2006 dans les cadastres d'émissions AMMA (a) et WERF (b).

La figure 1.16 représente les flux d'émissions d'isoprène dans l'inventaire WERF en Afrique en août 2006. La comparaison avec le cadastre d'émissions AMMA (figure 1.6) montre que des quantités plus élevées d'isoprène sont émises par la végétation entre  $5^\circ\text{N}$  et  $15^\circ\text{N}$  dans l'inventaire WERF. Les émissions d'isoprène sont cependant plus élevées dans le bassin du Congo dans l'inventaire AMMA.

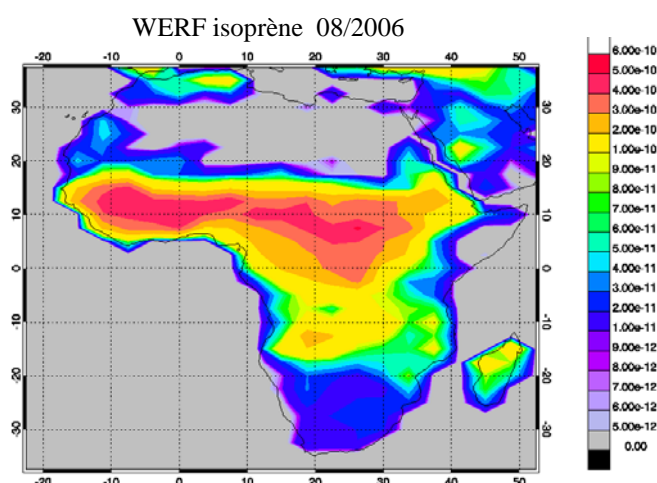


FIG. 1.16 – Flux d'émissions totales d'isoprène [ $\text{Kg (C)/m}^2/\text{s}$ ] en Afrique en août 2006 dans le cadastre d'émissions WERF.



## 1.6 Conclusion

Ce chapitre a permis de présenter les principaux processus qui caractérisent la circulation atmosphérique en Afrique équatoriale. La dynamique Africaine est caractérisée par des systèmes anticycloniques (Sahara, Sainte-Hélène) qui sont à l'origine des flux d'Harmattan et des flux de mousson dans les basses couches de la troposphère. La convergence de ces masses d'air forme la Zone de Convergence Inter-Tropicale (ZCIT) qui est une zone d'intense convection. L'évolution saisonnière des systèmes anticycloniques en Afrique conduit à une variation latitudinale de la position de la ZCIT. Cette dernière migre de 5°N à 10°N progressivement entre l'hiver et l'été boréal. La transition de la ZCIT vers le nord en juillet-août marque l'installation du régime de mousson africaine. La circulation troposphérique en Afrique équatoriale est caractérisée aussi par les Jets d'Est Africains (AEJ). Ces vents thermiques sont centrés vers 5°N-10°N et 10°W-10°E et se situent à une altitude de 600-700 hPa. La haute troposphère est caractérisée par le Jet d'Est tropical (TEJ) qui est centré sur l'océan Indien à l'altitude 200 hPa.

Ce chapitre a permis également de faire un rappel des principaux processus de formation et de destruction de l'ozone dans l'atmosphère et des principales sources d'émissions de précurseurs de l'ozone en Afrique. Ces sources sont principalement liées aux émissions des feux de biomasse qui ont lieu dans la saison sèche de chaque hémisphère (été boréal pour l'Afrique centrale et hiver boréal pour l'Afrique de l'Ouest), aux rejets urbains d'émissions anthropiques dans les mégapoles africaines, à l'industrie pétrolière dans certains pays (e.g. Nigeria) et aux différentes émissions naturelles (émissions de COVs biogéniques, de NO par les sols et par les éclairs).

Dans le cadre du projet AMMA, dédié à l'étude des mécanismes de la mousson africaine, une campagne d'observations a été réalisée en Afrique de l'Ouest pendant l'été 2006. Des mesures de plusieurs espèces chimiques (e.g. CO, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub>, isoprène, HCHO, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) ont été effectuées par cinq avions (B\_146, ATR, F\_F20, D\_F20 et M55) en juillet et août 2006 dans presque toute la troposphère en Afrique de l'Ouest. Des sondages de l'ozone ont également été effectués à Cotonou (Bénin) entre juin et août 2006. En plus de ces données, les mesures de CO et d'O<sub>3</sub> effectuées dans le cadre du programme MOZAIC ont été utilisées dans cette thèse pour analyser la distribution de l'ozone et de ses précurseurs en Afrique de l'Ouest et pour évaluer les performances du modèle global LMDz\_INCA dans cette région. Les résultats de cette étude seront présentés aux chapitres suivants (2, 3, 4 et 5).

Les cadastres d'émissions AMMA et WERF utilisés dans les simulations du modèle LMDz\_INCA, présentées dans le chapitre 2, ont été décrits dans ce chapitre. Ces deux cadastres sont basés sur des inventaires différents, notamment pour les émissions des feux de biomasse, les émissions anthropiques et les émissions biogéniques. Le cadastre d'émissions AMMA utilise les émissions des feux de biomasse et les émissions anthropiques en Afrique développées dans le cadre du projet AMMA. La comparaison des deux cadastres montre qu'ils sont différents aussi bien dans la distribution spatiale des émissions que par les quantités d'émissions utilisées. En Afrique, les quantités d'émissions de CO et de NO<sub>x</sub> sont plus élevées dans le

## 1.6 Conclusion.

cadastre AMMA (tableau 1.5). La comparaison des deux inventaires montre que la contribution des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale et des émissions anthropiques de CO est plus élevée dans l'inventaire AMMA. Les quantités totales de COVs sont presque identiques dans les deux cadastres. Cependant, des quantités d'isoprène plus élevées sont émises par la végétation en Afrique de l'Ouest dans l'inventaire WERF. Les émissions de HCHO dans cette région sont par contre plus élevées dans le cadastre AMMA. Les cadastres d'émissions AMMA et WERF sont utilisés pour évaluer l'impact des émissions sur les résultats de LMDz\_INCA. Les résultats de cette étude seront présentés et comparés aux données satellites disponibles en 2006 et aux données de la campagne AMMA dans les chapitres suivants.



# Chapitre 2

## Description et évaluation globale du modèle LMDz\_INCA.

Ce chapitre est consacré à la présentation du modèle LMDz\_INCA et à l'évaluation des résultats des simulations réalisées dans cette thèse pour étudier la distribution de l'ozone et de ses précurseurs dans la troposphère en Afrique de l'Ouest. Les premières sections présentent une description générale des différentes paramétrisations implémentées dans le modèle, notamment pour représenter les processus de transport dans LMDz, et les caractéristiques du module de chimie INCA. L'évaluation des performances de LMDz\_INCA est ensuite présentée en comparant les distributions globales des espèces chimiques ( $\text{CO}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$  et  $\text{HCHO}$ ) dans la troposphère simulées pour l'année 2006, aux mesures satellites disponibles. Cette évaluation permettra de voir si le modèle reproduit correctement les zones de pollution observées ainsi que la variabilité saisonnière de la distribution de ces espèces chimiques. Une attention particulière sera portée aux performances du modèle en Afrique. Enfin, les résultats de LMDz\_INCA sont comparés aux résultats d'autres modèles globaux en utilisant notamment des traceurs inertes émis en Afrique. Cela permettra de mieux comprendre les résultats du modèle et d'étudier l'impact des incertitudes qui subsistent actuellement dans les paramétrisations et les schémas chimiques des modèles globaux. Une évaluation plus complète des simulations de LMDz\_INCA réalisées est présentée dans les chapitres 3, 4 et 5 avec des comparaisons aux observations in-situ de la campagne AMMA.

### 2.1 Description générale du modèle LMDz

Le modèle LMDz (Laboratoire de Météorologie Dynamique, Zoom) est un modèle de circulation générale de l'atmosphère développé initialement par Sadourny and Laval (1984) au Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD). Comme tous les modèles de circulation générale atmosphérique, LMDz est bâti sur la résolution numérique des équations primitives de la météorologie : l'équation de conservation de la quantité de mouvement, l'équation thermodynamique, l'équation hydrostatique et l'équation de continuité. Ces équations sont discrétisées sur une grille horizontale, rectangulaire dans le plan longitude-latitude, de type Arakawa-C (Mesinger et Arakawa, 1976). La discrétisation de ces équations primitives est effectuée avec un pas de temps de 3 minutes (Harzallah and Sadourny, 1995 ; Le Treut et al., 1994).

LMDz effectue des calculs en chaque point d'un maillage tridimensionnel (3D) qui couvre l'ensemble de l'atmosphère. Il est séparé en deux parties :

- D'une part la partie dynamique contenant la résolution numérique des équations générales de la circulation atmosphérique. Cette partie est commune à toutes les atmosphères de type terrestre. Les calculs concernant cette partie sont effectués sur la grille 3D avec des échanges horizontaux entre mailles. Le transport à grande échelle des traceurs (y compris la vapeur d'eau) est réalisé suivant le schéma de Van Leer (1977) mis en œuvre et testé dans LMDz par Hourdin et Armengaud (1999).
- D'autre part la partie physique qui regroupe l'ensemble des paramétrisations physiques qui caractérisent l'atmosphère planétaire considérée : le transfert radiatif, la convection, les nuages...etc. Cette partie peut également être utilisée pour effectuer des simulations sur une colonne de l'atmosphère. Le transfert radiatif est calculé suivant les paramétrisations de Fouquart and Bonnel (1980) et Mcrette (1991). La turbulence dans la couche limite est représentée au travers d'une diffusion turbulente suivant le modèle de Louis (1979). La génération des ondes de gravité par l'orographie est paramétrée selon Lott et Miller (1997) et Lott (1999). La paramétrisation de la convection profonde est décrite dans la prochaine section.

La version de LMDz utilisée dans cette thèse (LMDz4) et ses performances sont décrites dans Hourdin et al. (2006). Cette version du modèle a une résolution horizontale de  $2.5^\circ$  en latitude et  $3.75^\circ$  en longitude (96x72 mailles). On obtient alors horizontalement des mailles de l'ordre de 400x280 kilomètres vers l'équateur. Cette grille peut être affinée par un « zoom » sur une région particulière pour atteindre une résolution horizontale de quelques dizaines de kilomètres. Sur la verticale, le modèle comporte 19 niveaux d'altitude qui sont répartis du sol jusqu'à près de 3 hPa (figure 2.1). Cela correspond à une résolution d'environ 300-500m en basse altitude (le premier niveau est à 70m), et à une résolution d'environ 2km au niveau de la tropopause (avec 7-9 niveaux situés dans la stratosphère). La répartition des couches verticales est irrégulière, afin de permettre une plus grande précision au niveau du sol. Elle a été définie suivant un système de coordonnées hybrides équivalentes  $\sigma$  (pression  $p$  normalisée par sa valeur à la surface  $p_s$  :  $\sigma = p/p_s$ ) près de la surface et à pression  $p$  plus haut. Cela afin d'assurer la stabilité numérique et la précision du calcul. Une version à 50 niveaux verticaux, répartis entre le sol et le niveau de pression 0.07hPa, a été développée récemment, notamment pour étudier la stratosphère (Lott et al., 2005). La figure 2.1 représente la structure verticale des versions troposphériques et stratosphériques de LMDz.

## 2.1 Description générale du modèle LMDz.

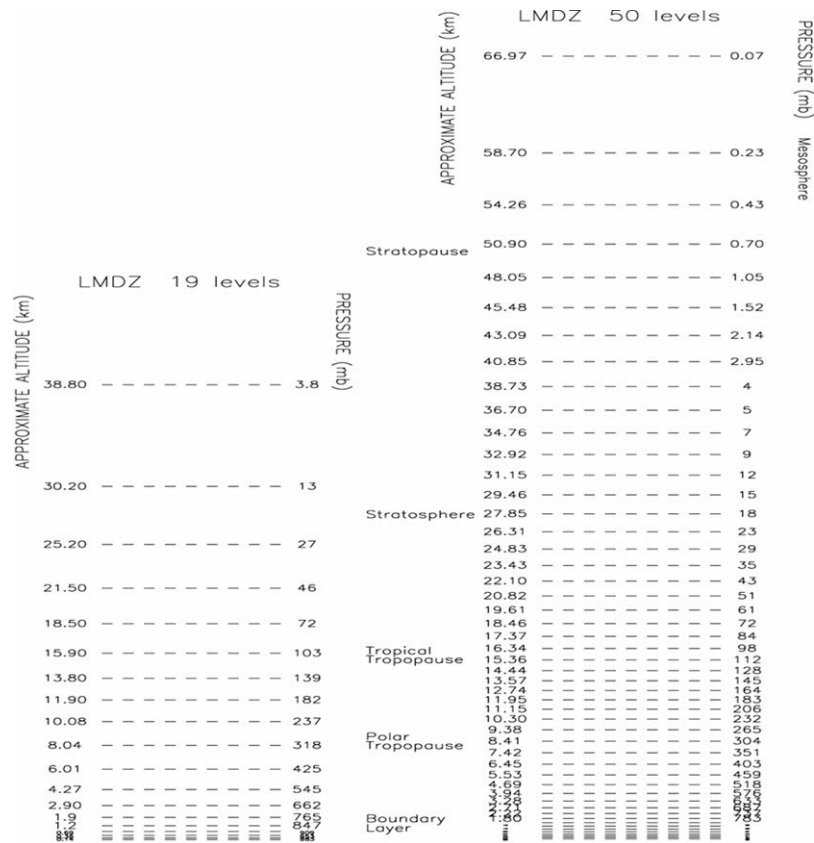


FIG 2.1 – Résolutions à 19 et 50 niveaux verticaux de LMDz.

### 2.1.1 Paramétrisation de la convection dans LMDz

Les versions les plus récentes de LMDz utilisent les schémas de Tiedtke (1989) et de Kerry Emanuel (1991, 1993) pour paramétriser la convection. Il est possible d'activer, au choix, l'une ou l'autre paramétrisation. La convection dans ces deux schémas est décrite par un ensemble de flux de masse, ascendants et descendants, qui induisent l'entraînement et le déentraînement de masses d'air entre le nuage convectif et l'environnement extérieur. Ces flux ascendants et descendants sont traités explicitement dans le modèle. On désigne souvent ces types de schémas par "schémas en flux de masse". La fraction nuageuse associée à la convection est prédite à partir du contenu en eau des nuages, lui-même prédit par le schéma en flux de masse au travers d'une distribution statistique (Bony and Emanuel, 2001). En plus des nuages convectifs, on prédit des nuages stratiformes à partir de l'eau totale dans la maille et de l'humidité à saturation, en imposant une distribution statistique.

Les schémas de Tiedtke et de Kerry Emanuel présentent plusieurs avantages en comparaison aux schémas de convection classiques, dits d'ajustement :

- un meilleur transport vertical des traceurs, en particulier la vapeur d'eau.
- une paramétrisation plus précise de la microphysique des nuages.
- un meilleur diagnostic de la distribution verticale de l'eau liquide.

## **Le schéma de Tiedtke**

Le schéma de Tiedtke ne différencie que deux flux de masse, un ascendant et l'autre descendant. Le transport est réalisé par une ascendance et une descente homogènes. L'entraînement est dû aux échanges turbulents entre l'environnement et le nuage et à la convergence de grande échelle. Le déentraînement est dû aux échanges turbulents et à la divergence de grande échelle au sommet du nuage. Il a lieu vers le niveau de flottabilité nulle. Le flux de masse à la base du nuage est déterminé à partir de la convergence de la vapeur d'eau à grande échelle pour la convection profonde. Pour la convection peu profonde, l'origine de la convection provient de la couche limite. L'humidité est apportée par l'évaporation de surface. Le schéma de convection utilisé par le modèle est proche de la version originale de Tiedtke (1998).

## **Le schéma de Kerry Emanuel**

C'est un schéma avec de multiples flux de masse, à flottabilités différenciées. L'air d'une couche sous-nuageuse est soulevé adiabatiquement jusqu'à chaque niveau  $i$  entre la base du nuage et le niveau de flottabilité neutre. Une fraction d'eau condensée est convertie en précipitations. L'air prélevé sur l'ascendance adiabatique au niveau  $i$  est mélangé à de l'air environnant, donnant un spectre de mélanges. Ces mélanges montent ou descendent selon leurs flottabilités.

Alors que dans Tiedtke le transport ascendant est réalisé par une ascendance homogène, dans le schéma d'Emanuel il est assuré par une ascendance adiabatique et plusieurs ascendances diluées nourries par l'entraînement. Emanuel décrit le transport descendant par une descente précipitante et plusieurs descentes diluées, contrairement à Tiedtke où la descente est homogène. Une autre particularité du schéma d'Emanuel est que l'entraînement et le déentraînement ont lieu à tous les niveaux de la colonne convective contrairement au schéma de Tiedtke où le déentraînement a lieu au niveau de flottabilité nulle. Aussi, le schéma d'Emanuel offre l'avantage de décrire de façon plus détaillée la physique des nuages convectifs. La distribution des précipitations dans les tropiques est plus réaliste avec ce schéma (Hourdin et al., 2006).

La figure 2.2 représente un schéma simplifié des principaux flux de masse au sein d'une colonne convective suivant la paramétrisation de Kerry Emanuel (entraînement, déentraînement, ascendance adiabatique, descente précipitante...etc).

## 2.1 Description générale du modèle LMDz.

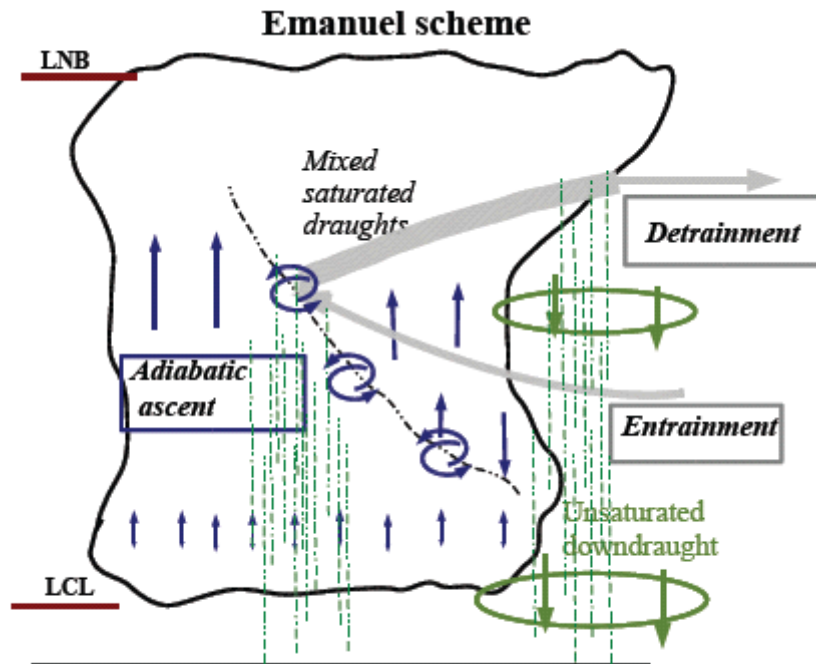


FIG 2.2 – Schéma simplifié des principaux flux de masse dans la paramétrisation de Kerry Emanuel (Grandpeix, 2009). Niveaux LCL (Lifting Condensation Level : niveau de condensation par ascendance) et LNB (Level of Neutral Buoyancy : niveau de flottabilité nulle).

### 2.1.2 Développements en cours autour de LMDz

Différents développements ont été entrepris ces dernières années au LMD pour intégrer de nouvelles paramétrisations dans LMDz dans le but d'améliorer ses performances. Ces développements portent notamment sur la paramétrisation de la couche limite, de la convection et des nuages ainsi que sur la résolution spatiale dans le modèle. Le nouveau schéma de couche limite, en cours de développement, combine à la fois la diffusion turbulente et un schéma en flux de masse (Hourdin et al., 2002 ; Rio and Hourdin, 2008). Une version modifiée du schéma de la convection d'Emanuel a été développée par Grandpeix et al. (2004) et pourra être utilisée dans la nouvelle version du modèle. Lott et al. (2005) ont intégré des paramétrisations spécifiques des ondes pour la représentation de la dynamique stratosphérique. Un nouveau schéma de rayonnement basé sur le modèle RRTM (Rapid Radiation Transfer Model en anglais ; Mlawer et al., 1997) est également en cours de test. Des efforts importants sont réalisés aussi pour améliorer la résolution spatiale dans le modèle. L'évolution des moyens informatiques ces dernières années permet en effet, grâce aux techniques de parallélisation informatique, d'affiner aussi bien la résolution horizontale que verticale dans le modèle. La validation de la nouvelle version de LMDz, qui inclura ces différentes paramétrisations, nécessite au préalable des évaluations constantes de ses performances notamment à l'aide d'observations satellitaires et in-situ (e.g. AMMA).



### 2.1.3 Domaines d'application de LMDz

Couplé avec les modèles d'océan, de sols, de couverture végétale (e.g. ORCHIDEE) et de glace de mer ou de chimie atmosphérique, LMDz permet de simuler le climat actuel, de reconstituer les climats passés et de prévoir l'impact climatique de divers scénarios : réchauffement par effet de serre, effet de la déforestation tropicale...etc. LMDz a été utilisé dans plusieurs études sur le climat et ses évolutions naturelles et anthropogéniques (Nesme-Ribes et al., 1993 ; Le Treut et al., 1994 ; Le Treut et al., 1998). Intégré au modèle climatique IPSL-CM4, de nombreuses simulations ont été effectuées sur le changement climatique et ses impacts sur l'environnement (Friedlingstein et al., 2001; Dufresne et al., 2002). Récemment, LMDz a été utilisé pour effectuer des projections du changement climatique pour le 4<sup>ème</sup> rapport du GIEC (Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat). En plus de la version terrestre de LMDz, des versions planétaires ont été développées pour étudier l'atmosphère d'autres planètes notamment Mars (Hourdin et al., 1993 ; Forget et al., 1999) et Titan (Hourdin et al., 1995 ; Rannou et al., 2006).

## 2.2 Le module de chimie INCA

INCA (Interaction Chimie – Aérosols) est un module de chimie – aérosols développé au laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE). Il simule la chimie troposphérique, les émissions, le lessivage et le dépôt sec de plusieurs espèces chimiques (Hauglustaine et al., 2004 ; Folberth et al., 2006). Il est capable de représenter la chimie d'une centaine de gaz et aérosols et plus de trois cents réactions chimiques. Couplé avec le modèle LMDz, INCA permet de calculer les distributions dans l'atmosphère des espèces gazeuses et aérosols en prenant en compte les émissions, le transport, les transformations photochimiques, et les dépôts secs et humides. A chaque pas de temps de la physique (i.e. 30 min), LMDz appelle le modèle INCA qui calcule l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère. Ce couplage permet une meilleure prise en compte de la variabilité temporelle des processus physiques.

Plusieurs versions du module INCA, correspondant à des degrés de complexité des processus chimiques différents (chimie gazeuse simplifiée, prise en compte des COVs, aérosols...etc), ont été développées. Ainsi, une première version est utilisée pour le transport des traceurs inertes et ne prend pas en compte les transformations chimiques. Une version améliorée a été ensuite conçue pour calculer le temps d'évolution des traceurs notamment celui des gaz à effet de serre ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ). Dans une version plus récente (INCA- $\text{CH}_4$ ), décrite et évaluée par Hauglustaine et al. (2004), le schéma d'oxydation du méthane a été introduit afin de pouvoir calculer la distribution de l'ozone troposphérique et du radical hydroxyle OH. Les émissions et les réactions chimiques faisant intervenir  $\text{CH}_4$ , CO,  $\text{O}_3$  et  $\text{NO}_x$  sont prises en compte dans cette version. D'autres versions (e.g. INCA- $\text{CH}_4$ -AER) ont été développées pour étudier la distribution des aérosols (sulfate, poussière, carbone organique, noir de carbone...etc) et leur impact sur le climat (Bauer et al., 2004 ; Guibert et al., 2005 ; schulz et al.,

2006). Une version dédiée à l'étude de la chimie stratosphérique (INCA\_STRAT) a également été développée et a été couplée avec la version de LMDz à 50 niveaux d'altitudes.

Dans cette thèse, c'est la version INCA\_NMHC (Folberth et al., 2005, 2006) qui est utilisée. En plus de la chimie de  $\text{CH}_4\text{-NO}_x\text{-CO-O}_3$ , représentative de la chimie de fond dans la troposphère, INCA\_NMHC prend en compte le schéma d'oxydation des COVs et de leurs produits d'oxydation. L'inclusion des COVs, d'origines naturelles et anthropiques, permet d'étudier l'impact du changement de la biosphère sur la chimie troposphérique et sur le climat.

Les mécanismes d'oxydation de plusieurs COVs (éthane, propane, éthylène, isoprène, terpènes...etc) sont pris en compte dans la version INCA\_NMHC. Les espèces COVs à courte chaîne sont traitées explicitement alors que les espèces à chaîne longue sont regroupées en une seule espèce comme proposé par Brocheton (1999). Ainsi, les alcanes ayant jusqu'à 3 atomes de carbone (e.g. méthane, éthane, propane) sont traités explicitement alors que d'autres espèces (e.g. n\_butane, iso\_hexane, i\_butane) sont regroupées dans l'espèce ALKAN. De même, les alcènes à longue chaîne (e.g. 1\_butene, 1\_pentene) sont regroupés dans l'espèce ALKEN alors que l'éthylène ( $\text{C}_2\text{H}_4$ ) et le propène ( $\text{C}_3\text{H}_6$ ) sont traités seuls. L'isoprène ainsi que certains de ses produits d'oxydation (méthyle vinyle cétone et méthacroléine) sont inclus dans le modèle. INCA\_NMHC inclus également la chimie des terpènes, 3 cétones (acétone, méthyle éthyle cétone et méthyle vinyle cétone), le peroxy acétyl nitrate (PAN), des aldéhydes (formaldéhyde, acétaldéhyde), des alcools (e.g. méthanol)...etc. Les réactions et les constantes de réactions sont basées sur le schéma de Brocheton (1999). Ces dernières ont été revues et actualisées par Folberth et al. (2005, 2006) suivant les résultats de Atkinson et al. (1997) et DeMore et al. (1997). C'est la version LMDz4\_INCA3\_NMHC du modèle LMDz\_INCA, mise à disposition au début de l'année 2007, qui a été utilisée dans cette thèse. Pour des raisons de simplicité, nous désignerons la version du modèle par LMDz\_INCA dans la suite de ce manuscrit.

## 2.3 Dépôt sec et lessivage

Le dépôt sec des constituants chimiques (e.g.  $\text{O}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HNO}_4$ , CO, HCHO) au niveau de la surface est défini suivant l'approche des résistances en série (Wesely, 1989 ; Walmsley and Wesely, 1996 ; Wesely and Hicks, 2000). La vitesse de dépôt  $V_d$  est l'inverse de la résistance totale  $R_{tot}$  qui est considérée comme la somme de trois résistances en série :

$$R_{tot} = R_a + R_b + R_c \text{ (en s/m)}$$
$$V_d = 1 / R_{tot}$$

$R_a$ ,  $R_b$  et  $R_c$  sont respectivement la résistance aérodynamique, la résistance de la sous-couche laminaire et la résistance de surface. Les résistances  $R_a$  et  $R_b$  qui représentent la résistance atmosphérique au transfert vertical d'une espèce chimique sont calculées suivant Walcek et al. (1986). La résistance  $R_c$  représente la résistance globale de la

surface à la destruction d'une espèce chimique. Elle est calculée en utilisant la carte de la classification de la végétation donnée par DeFries and Townshend (1994), interpolée sur la grille du modèle et redistribuée suivant la classification proposée par Wesely (1989). Les variables météorologiques nécessaires au calcul de  $R_a$ ,  $R_b$  et  $R_c$  (température, humidité spécifique, vents, précipitation...etc) sont calculées par LMDz à chaque pas de temps.

Dans INCA, le lessivage d'espèces chimiques solubles (e.g.  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{CH}_3\text{OOH}$ ,  $\text{HCHO}$ ,  $\text{HNO}_4$ ) est calculé séparément pour les précipitations convectives et stratiformes. La paramétrisation du lessivage est basée sur le schéma de Giorgi and Chameides (1985) :

$$\frac{d}{dt} C_g = -\beta C_g$$

$C_g$  et  $\beta$  sont respectivement la concentration de l'espèce considérée et le coefficient de lessivage (en 1/s). Le lessivage associé aux précipitations stratiformes est calculé suivant le schéma de Seinfeld and Pandis (1998). Pour les précipitations convectives, c'est la paramétrisation de Balkanski et al. (1993) qui est utilisée. Le taux de lessivage de l'acide nitrique ( $\text{HNO}_3$ ) est utilisé comme référence dans le calcul du taux de lessivage des autres espèces suivant le schéma de Seinfeld and Pandis (1998).

## 2.4 Modélisation des $\text{NO}_x$ produits par les éclairs

La modélisation des  $\text{NO}_x$  produits par les éclairs (LiNOx dans la suite du manuscrit) dans LMDz\_INCA a été effectuée par Jourdain and Hauglustaine (2001). La production des LiNOx dans le modèle est définie par des paramétrisations qui déterminent le nombre d'éclairs et le nombre de molécules de NO produites par éclair. La paramétrisation de Price et Rind (1992) est utilisée pour calculer le nombre d'éclairs par orage. La fréquence des éclairs est déterminée en fonction de l'altitude du sommet des nuages suivant ces relations :

$$F_c = 3.44 \times 10^{-5} H^{4.9} \quad (1)$$

$$F_m = 6.40 \times 10^{-4} H^{1.73} \quad (2)$$

où  $F_c$  et  $F_m$  représentent la fréquence des éclairs par minute, respectivement pour les orages continentaux et maritimes, et  $H$  représente la hauteur du nuage en kilomètres.

Suivant que les éclairs soient de type intra-nuageux ou de type nuage-sol, ils ne dissipent pas la même quantité d'énergie. La quantité de NO émise, qui dépend de la quantité d'énergie dissipée, n'est donc pas la même. La répartition entre ces deux types d'éclairs est déterminée par la paramétrisation de Price and Rind (1993). Les quantités de NO produites par éclair intra-nuageux et nuage-sol, utilisées dans LMDz\_INCA, sont respectivement  $6.7 \times 10^{25}$  et  $6.7 \times 10^{26}$  molécules. Un facteur correctif a été utilisé afin de simuler des distributions d'éclairs réalistes et d'arriver à

## 2.4 Modélisation des NO<sub>x</sub> produits par les éclairs.

produire la valeur annuelle moyenne de NO de 5 Tg(N)/an recommandée par l'IPCC (2001) (Jourdain and Hauglustaine, 2001; Hauglustaine et al., 2004).

Les paramétrisations de Price et Rind (1992, 1993) servent à répartir les éclairs dans l'espace et à calculer leur nombre ainsi que la quantité de NO émise. La redistribution des LiNO<sub>x</sub> par le transport convectif peut influencer leur distribution verticale dans l'atmosphère. Afin de modéliser cette redistribution des LiNO<sub>x</sub>, Jourdain et Hauglustaine (2001) ont testé différentes paramétrisations (Goldenbaum and Dickerson, 1993 ; Pickering et al., 1998), et des comparaisons ont été effectuées aux mesures de NO de la campagne ELCHEM (Ridley et al., 1994) au Nouveau Mexique (Etats-Unis) en été 1989. Les résultats obtenus avec la paramétrisation de Pickering et al. (1998) étaient en bon accord avec les observations et cette paramétrisation a été donc choisie et implémentée dans LMDz\_INCA. La distribution verticale des molécules de NO dans cette paramétrisation présente un maximum dans la haute troposphère (55 à 75%) entre 8 et 14 km. Une fraction importante (environ 20%) est également modélisée dans la couche limite, notamment aux moyennes latitudes où il y a une forte intensité des mouvements descendants de l'air dans les orages. C'est dans la moyenne troposphère, entre 2 et 5 km, que la distribution des molécules de NO présente un minimum. Pendant la campagne AMMA, plusieurs observations ont montré l'augmentation des concentrations de NO<sub>x</sub>, due aux LiNO<sub>x</sub> notamment dans la haute troposphère. Des comparaisons entre les résultats de LMDz\_INCA et ces observations sont présentées au chapitre 3.

## 2.5 Les différentes simulations réalisées

Dans cette thèse, le modèle LMDz\_INCA a été utilisé pour réaliser différentes simulations pour l'année 2006 afin d'étudier l'impact des émissions et du transport sur la composition chimique de la troposphère en Afrique équatoriale. Afin de mieux comparer le modèle aux différentes observations disponibles en 2006, LMDz\_INCA a été guidé par les champs de vents issus des analyses du Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme (CEPMET ou ECMWF en anglais). Cette technique, dite de "guidage" est couramment utilisée par les modèles pour mieux évaluer les distributions des espèces chimiques sur une période de temps donnée. Le tableau 2.1 montre la liste des simulations réalisées. Ces dernières seront détaillées et analysées au fur et à mesure dans les prochains chapitres 3, 4 et 5.

La simulation TI\_AMMA est réalisée avec le schéma de convection Tiedtke (TI dans la suite du manuscrit). Des comparaisons sont effectuées systématiquement entre cette simulation et la simulation KE\_AMMA, qui utilise le schéma d'Emanuel (KE dans la suite du manuscrit), pour étudier l'impact du schéma de convection sur les résultats du modèle. Seul le schéma de convection différencie en effet ces deux simulations. Les résultats de ces comparaisons seront présentés au chapitre 3. Afin d'analyser la sensibilité des résultats du modèle aux émissions, les deux cadastres d'émissions AMMA et WERF, décrits au chapitre 1, ont été utilisés respectivement dans les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF. Pour rappeler, les émissions AMMA utilisent des émissions anthropiques et des émissions des feux de biomasse spécifiques en Afrique, développées dans le cadre du projet AMMA (Lioussé et al., 2010) pour

l'année 2006. Les émissions biogéniques de COVs, utilisées dans l'inventaire AMMA, ont été générées par le modèle de la biosphère ORCHIDEE (Lathière et al., 2006). En dehors du continent Africain, les émissions AMMA sont basées sur les inventaires RETRO (<http://www.retro.enes.org>) pour les émissions anthropiques et GFED (van der Werf et al., 2006) pour la combustion de la biomasse. L'inventaire WERF est basé sur les émissions GEIA (<http://www.geiacenter.org>) et EDGAR (Olivier et al., 1996, Olivier and Berdowski, 2001) respectivement pour les émissions biogéniques et anthropiques. Les émissions des feux de biomasse sont basées sur l'inventaire GFED. Les émissions de NO par les sols sont identiques dans les deux cadastres et sont basées sur Yienger and Levy (1995).

La simulation KE\_AMMA est choisie comme simulation de référence tout au long de cette thèse car, d'une part, elle utilise les émissions spécifiques AMMA, et d'autre part elle donne de meilleurs résultats en Afrique de l'Ouest, comme le montrent les comparaisons avec les données in-situ de la campagne AMMA dans les chapitres 3 et 4. La simulation KE\_AMMA a également été utilisée pour comparer les résultats de LMDz\_INCA aux résultats d'autres modèles globaux, présentés dans la section 2.7 et dans l'annexe A.

Plusieurs tests de sensibilité ont été effectués pour étudier l'impact du transport convectif et des LiNOx (e.g. LiNOx\_off, Conv\_off, Conv\_LiNOx\_off, LiNOx2). Les résultats de ces tests seront présentés aux chapitres 3 et 5. Dans les simulations SLNOx et SNOx une réduction de 20% a été effectuée respectivement sur les quantités de LiNOx et des NO<sub>x</sub> émis par les sols en Afrique afin d'étudier la contribution de ces émissions au budget régional de l'ozone. De même, la quantité d'émissions biogéniques, anthropiques et des feux de biomasse a été réduite de 20% en Afrique, respectivement dans les simulations BIO, ANTH et BB, afin d'analyser leur influence sur l'ozone en Afrique équatoriale. Dans le test ASIE, les émissions en Asie du sud-est (Inde, Chine, Corée, Japon) ont été réduites de 20% pour estimer l'influence du transport à longue distance depuis ces régions sur la composition chimique de la troposphère en Afrique de l'Ouest. Les résultats de ces tests seront discutés au chapitre 5. Le test de sensibilité INJ\_BB a été effectué pour étudier l'impact de l'injection en altitude des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sur les résultats de LMDz\_INCA. Les émissions dans cette région ont été injectées jusqu'à 1 km, 3 km et 4km d'altitudes afin de tester l'influence de la hauteur d'injection des émissions. Dans la simulation DIST\_BB, les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale ont été déplacées de 3° plus au nord afin d'analyser l'influence de la distribution spatiale de ces émissions sur les résultats du modèle. Les résultats de ces derniers tests sont présentés au chapitre 4.

## 2.5 Les différentes simulations réalisées.

<b>Simulations 2006</b>	<b>Emissions et schéma de convection</b>	<b>Description générale des simulations</b>
KE_AMMA	AMMA, KE	Simulation de référence
TI_AMMA	AMMA, TI	Simulation avec le schéma de TI
KE_WERF	WERF, KE	Simulation avec le schéma de KE
LiNOx_off	AMMA, KE	sans les LiNOx en Afrique
Conv_off	AMMA, KE	sans convection en Afrique
Conv_LiNOx_off	AMMA, KE	sans convection et sans LiNOx en Afrique
INJ_BB	AMMA, KE	Injection des émissions en Afrique centrale à 1, 3 et 4 km d'altitude
DIST_BB	AMMA, KE	Emissions B.B. en Afrique centrale déplacées de 3° au nord
LiNOx2	AMMA, KE	+50% de LiNOx en Afrique
SLNOx	AMMA, KE	-20% de LiNOx en Afrique
SNOx	AMMA, KE	-20% des émissions de NOx par les sols en Afrique
BIO	AMMA, KE	-20% des émissions biogéniques en Afrique
ANTH	AMMA, KE	-20% des émissions anthropiques en Afrique
BB	AMMA, KE	-20% des émissions feux de biomasse en Afrique
ASIE	AMMA, KE	-20% des émissions Asiatiques

TAB. 2.1 – Simulations du modèle LMDz\_INCA réalisées et utilisées dans la thèse.

## 2.6 Evaluation des simulations de LMDz\_INCA

Cette section est consacrée à l'évaluation des résultats des simulations KE\_AMMA et KE\_WERF. Les résultats de ces deux simulations pour l'année 2006, sont comparés à des colonnes troposphériques de NO<sub>2</sub>, d'O<sub>3</sub>, et des colonnes totales de CO et HCHO, mesurées par des instruments embarqués à bord de satellites. Cette comparaison va permettre d'évaluer quantitativement et qualitativement la distribution globale et la variabilité saisonnière en 2006 de ces espèces chimique dans le modèle. Une attention particulière sera portée à la performance du modèle en Afrique équatoriale, notamment pendant la saison de la mousson en juin-août 2006. Les variabilités saisonnières des colonnes observées et calculées dans plusieurs régions en Afrique (figure 2.6) sont également étudiées. Les émissions dans ces régions (feux de biomasse, biogéniques, LiNOx et les NO<sub>x</sub> émis par les sols) varient en effet suivant que la saison soit sèche ou humide. Ainsi, pendant la saison sèche de l'hémisphère nord en Afrique (novembre-février), les régions au nord de l'équateur sont influencées par les émissions des feux de biomasse. Pendant la saison humide de l'hémisphère nord (juin-août), ce sont les régions au sud de l'équateur qui sont influencées par les émissions des feux de biomasse (Sauvage et al., 2005). C'est également pendant la saison humide

de chaque région que sont émis en grande quantité les  $\text{NO}_x$  produits par les éclairs (Sauvage et al., 2007c) et par les sols (Jaeglé et al., 2004 ; Stewart et al., 2008).

### 2.6.1 Distribution de CO

Les figures 2.3 et 2.4 montrent les colonnes totales de CO restituées à partir des mesures de l'instrument MOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere) (Drummond and Mand, 1996 ; Deeter et al., 2003, 2004) et celles calculées pour la simulation KE\_AMMA respectivement pour janvier et août 2006. L'instrument MOPITT a été placé à bord du satellite NASA Terra pour mesurer la distribution de CO dans l'atmosphère. Opérationnel depuis mars 2000, il observe au nadir les rayons de longueur d'onde de  $4.7 \mu\text{m}$  pour calculer les profils verticaux de CO et les rayons solaires réfléchis par la surface terrestre ou l'atmosphère dans la bande spectrale 2.2-2.5  $\mu\text{m}$ , pour calculer les colonnes de CO et de  $\text{CH}_4$ . MOPITT a une résolution horizontale de  $22 \text{ km} \times 22 \text{ km}$  et produit une couverture globale au bout de 3 jours environ. Les données utilisées dans cette section sont de la version Level2 V3 des données de jour de MOPITT (Emmons et al., 2004, 2007, 2009) caractérisées par la mesure de colonnes totales de CO et de profils verticaux à 7 niveaux d'altitude dans l'atmosphère (surface, 850 hPa, 700 hPa, 500 hPa, 350 hPa, 250 hPa et 150 hPa). Afin de comparer LMDz\_INCA aux observations MOPITT, les colonnes de CO du modèle sont calculées dans chaque cellule du modèle à 10h30 heure locale qui correspond au temps local de passage du satellite.

En janvier 2006 (figure 2.3), la simulation KE\_AMMA reproduit assez bien le gradient inter-hémisphérique observé par MOPITT, avec des valeurs élevées des colonnes de CO dans l'hémisphère nord. Le modèle reproduit également les faibles valeurs observées au Groenland, à l'Ouest de l'Amérique du nord et sur le plateau Tibétain. Ces faibles valeurs peuvent être dues aux faibles émissions de CO dans ces régions montagneuses et à l'effet de l'orographie qui peut contribuer à la redistribution des émissions vers d'autres régions. Les zones polluées dans les tropiques (Afrique équatoriale, Asie du sud et Amérique latine) et dans l'hémisphère nord (moyen orient, Europe occidentale, est des Etats-Unis, océans Pacifique et Atlantique) sont aussi simulées correctement. Cependant, les valeurs observées dans ces dernières régions sont sous-estimées de 20-30% par la simulation KE\_AMMA. Ce désaccord peut s'expliquer en partie par une éventuelle sous-estimation des émissions de CO anthropiques dans ces régions pendant l'hiver. Cela induit par conséquent la sous-estimation des valeurs observées dans les régions influencées par le transport à longue distance telles que l'océan Atlantique (Shindell et al., 2006). Le désaccord entre KE\_AMMA et les données MOPITT peut s'expliquer aussi par une surestimation de CO par MOPITT. En effet, Emmons et al. (2009) ont montré, à travers des comparaisons entre les observations MOPITT et des données in-situ, que les observations sur l'année 2006 dans la version V3 de MOPITT présentent des biais positifs de 5 à 10% en Europe occidentale et aux Etats-Unis, et de 20% environ au dessus de l'océan Atlantique. Le modèle surestime de 10-20% les valeurs observées en Russie, probablement à cause d'une surestimation des émissions dans cette région.

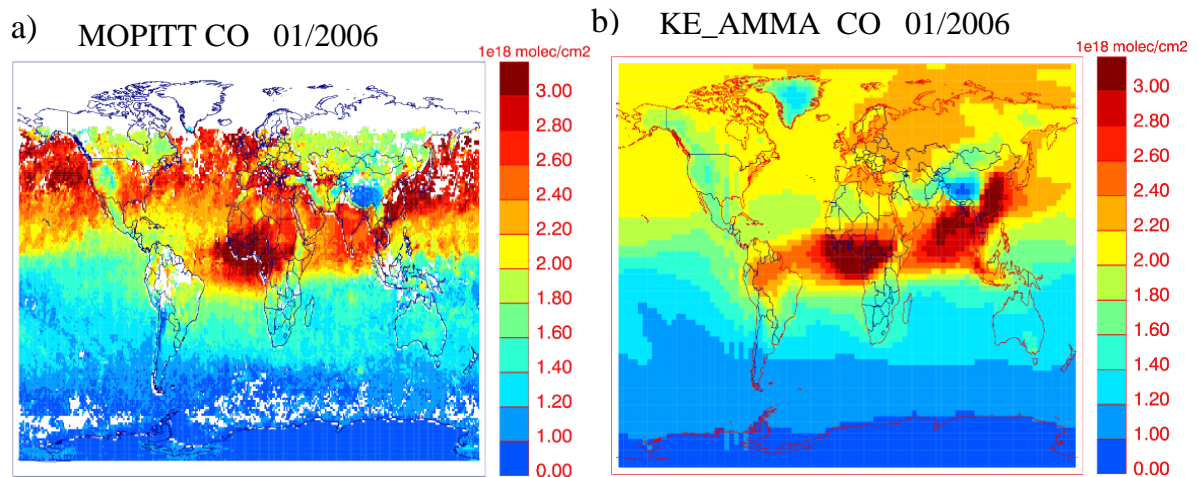


FIG. 2.3 - Colonnes totales de CO ( $10^{18}$  molécules/cm<sup>2</sup>) moyennées en janvier 2006, observées par MOPITT (a) et calculées par la simulation KE\_AMMA (b).

En août 2006 (figure 2.4), le modèle simule les maximums dans les régions polluées de l'hémisphère sud (Afrique centrale, Amérique du sud, océan Atlantique) mais surestime les colonnes de CO observées. Les prochaines sections montrent que les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sont probablement surestimées dans le cadastre d'émissions AMMA utilisé par la simulation KE\_AMMA. Cela peut expliquer la surestimation des colonnes de CO dans cette région et également dans l'océan Atlantique et l'Amérique du sud étant donné que le transport à longue distance redistribue les masses d'air polluées depuis l'Afrique centrale vers ces régions. L'incertitude sur les observations MOPITT, qui peut sous-estimer les plumes des feux de biomasse, peut expliquer aussi le désaccord entre le modèle et les observations.

Le modèle sous-estime les colonnes totales de CO observées dans presque tout l'hémisphère nord. En plus d'une éventuelle sous-estimation des émissions anthropiques de CO dans ces régions, une forte destruction photochimique, due probablement à une surestimation de OH, peut expliquer aussi ce désaccord entre le modèle et MOPITT. L'incertitude qui subsiste sur les COVs peut expliquer également ce désaccord avec les observations étant donné que les COVs peuvent contribuer indirectement (après oxydation) au budget de CO dans l'hémisphère nord. De fortes quantités de COVs biogéniques sont en effet émises en Amérique du nord, en Europe et en Asie pendant l'été boréal (Lathière et al., 2006).



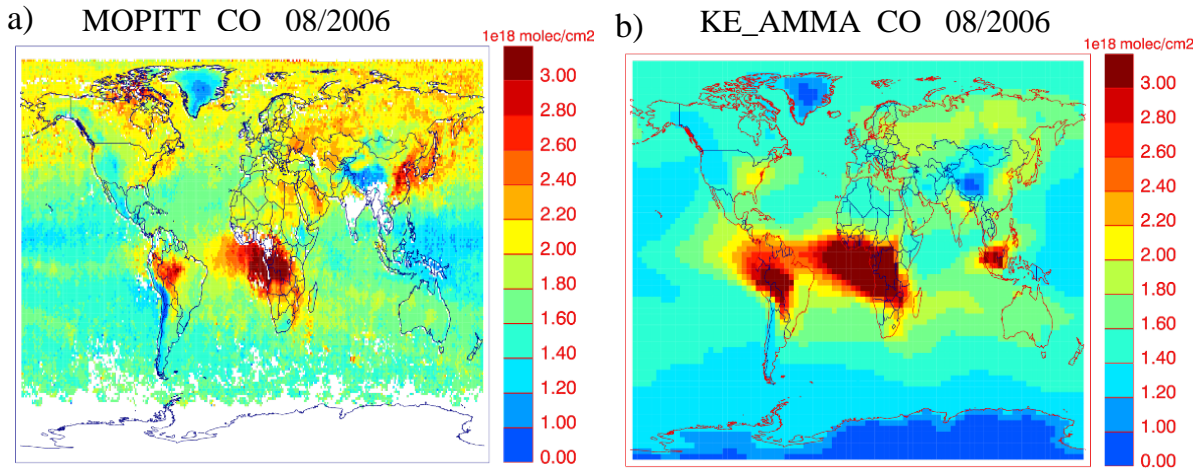


FIG. 2.4 - Colonnes totales de CO ( $10^{18}$  molécules/cm<sup>2</sup>) moyennées en août 2006, observées par MOPITT (a) et calculées par la simulation KE\_AMMA (b).

La figure 2.5 présente les colonnes totales de CO calculées par la simulation KE\_WERF pour janvier et août 2006. Les valeurs simulées pour janvier 2006 sont supérieures d'environ 10% à celles simulées par KE\_AMMA au dessus de l'Europe, de l'Amérique du Nord et des océans Pacifique et Arctique. Cette simulation reproduit donc mieux les observations MOPITT dans ces régions. La différence entre les émissions anthropiques utilisées dans ces régions peut expliquer la différence entre les deux simulations. En Afrique et dans les régions tropicales, les deux simulations montrent des distributions des colonnes de CO presque similaires en janvier. En août, KE\_WERF simule des valeurs inférieures de 10% à celles calculées par KE\_AMMA dans les hautes latitudes (Russie, Amérique du nord et océan Arctique). Les différences entre les émissions biogéniques utilisées peuvent expliquer les différences entre ces deux simulations. La simulation KE\_WERF reproduit mieux les valeurs élevées des colonnes de CO observées par MOPITT en Afrique centrale, dans l'océan Atlantique et en l'Amérique latine.

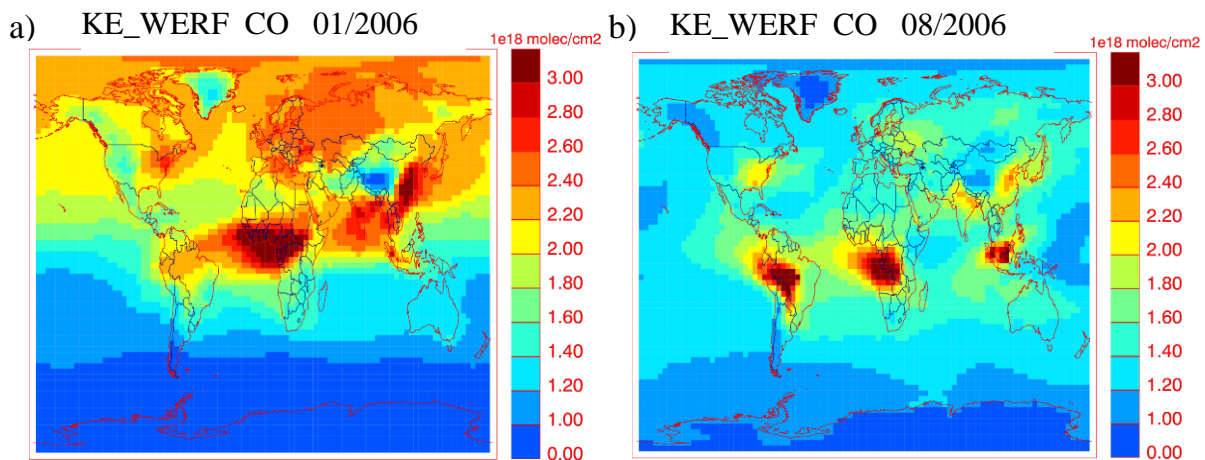


FIG. 2.5 - Colonnes totales de CO ( $10^{18}$  molécules/cm<sup>2</sup>) calculées par la simulation KE\_WERF, moyennées en janvier (a) et août (b) 2006.

## 2.6 Evaluation des simulations de LMDz\_INCA.

Afin de mieux analyser les distributions de CO en Afrique équatoriale, les profils verticaux de CO simulés ont été comparés aux profils observés par MOPITT. Pour une meilleure comparaison, les profils simulés ont été interpolés sur les 7 niveaux d'altitudes qui caractérisent la résolution verticale de MOPITT, suivant la méthode décrite par Rodgers and Connor (2003) et Deeter et al. (2003). Les profils verticaux de CO observés et simulés ont été moyennés dans chacune des régions définies dans le tableau 2.2 et montrées sur la figure 2.6. Ces régions sont : l'Afrique de l'Ouest (AO), les régions proches du Golfe de Guinée (GG), la région des feux de biomasse en Afrique centrale (AC) et l'océan Atlantique (OA).

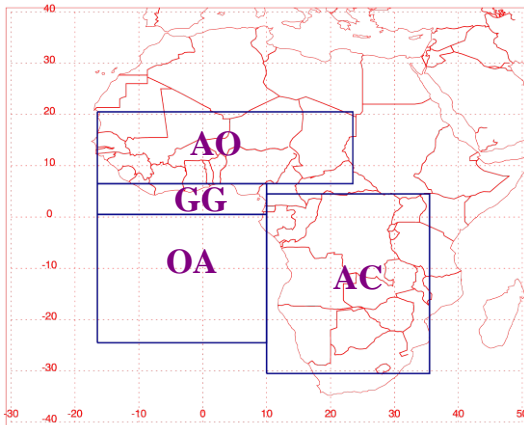


FIG. 2.6 – Régions où sont moyennés les profils de CO simulés par KE\_AMMA et KE\_WERF et observés par MOPITT.

Nom	Région
AO	16°W-23°E ; 6°N-20°N
GG	16°W-10°E ; 0°N-6°N
OA	16°W-10°E ; 24°S-0°N
AC	10°E-35°E ; 30°S-4°N

TAB. 2.2 - Régions où sont moyennés les profils de CO simulés par KE\_AMMA et KE\_WERF et observés par MOPITT.

Pendant l'hiver boréal en janvier 2006, les deux simulations KE\_AMMA et KE\_WERF reproduisent assez bien les valeurs élevées des colonnes de CO observées par MOPITT dans la partie nord de l'Afrique équatoriale et au dessus de l'océan Atlantique (figures 2.3 et 2.5). Ces valeurs élevées sont dues à l'influence des émissions des feux de biomasse (Sauvage et al., 2005). La figure 2.7 montre les profils verticaux de CO observés par MOPITT et simulées par KE\_AMMA et KE\_WERF, moyennés sur janvier 2006 et sur les régions AO et GG (figure 2.6). Au dessus de la région AO, les profils moyens de CO observés sont sous-estimés d'environ 20-40 ppbv dans la moyenne et basse troposphère par les deux simulations. Ce désaccord peut s'expliquer par une possible sous-estimation des émissions de CO par les feux de biomasse dans cette région. Dans la haute troposphère, les profils simulés représentent bien le profil observé. Les deux simulations reproduisent également bien le profil observé au dessus de la région GG.

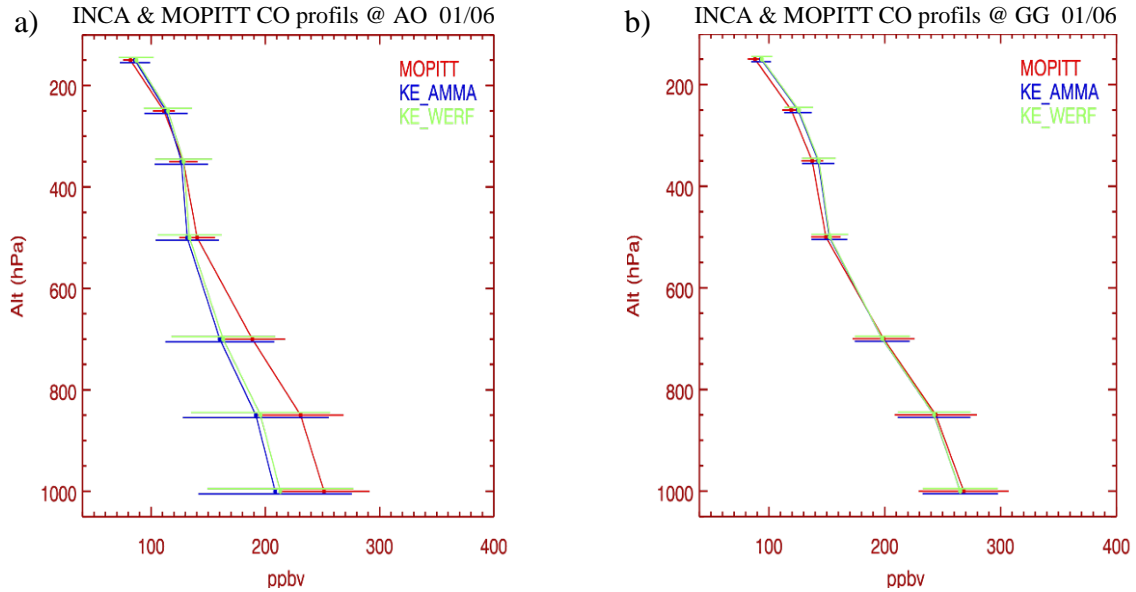


FIG. 2.7 - Profils verticaux de CO (en ppbv) observés par MOPITT (rouge) et simulés par KE\_AMMA (bleu) et KE\_WERF (vert) ; profils moyennés en janvier 2006 sur les régions AO (a) et GG (b).

La figure 2.8 montre les profils verticaux de CO observés par MOPITT et simulés par KE\_AMMA et KE\_WERF, moyennés en août 2006 et sur les régions AC et OA. Le profil moyen de CO observé dans la région AC est légèrement sous-estimé par KE\_WERF dans la basse et moyenne troposphère (-20 ppbv environ). Le profil observé dans la région OA est correctement reproduit par cette simulation. KE\_AMMA surestime les profils de CO observés dans les deux régions et dans presque toute la colonne troposphérique. La surestimation est plus importante dans la basse et la moyenne troposphère où les concentrations de CO calculées sont supérieures d'environ 50-100 ppbv à celles observées par MOPITT.

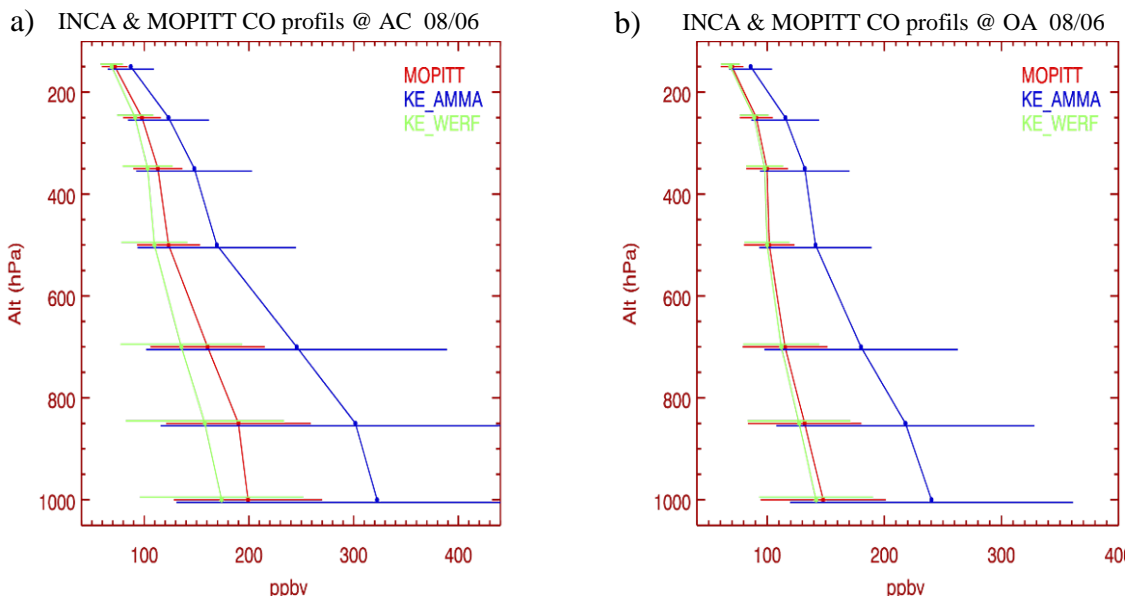


FIG. 2.8 - Profils verticaux de CO (ppbv) observés par MOPITT et simulés par KE\_AMMA et KE\_WERF ; profils moyens en août 2006 sur AC(a) et OA (b).

La figure 2.9 montre les profils verticaux de CO observés par MOPITT et simulés par KE\_AMMA et KE\_WERF, moyennés en août 2006 et sur les régions AO et GG. KE\_WERF sous-estime de 20-40 ppbv les valeurs observées dans la basse et la moyenne troposphère dans la région AO. La simulation KE\_AMMA reproduit mieux le profil MOPITT au dessus de cette région malgré une sous-estimation d'environ 20 ppbv des concentrations de CO observées dans la basse et la moyenne troposphère. Dans la région GG, les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF surestiment et sous-estiment respectivement de 20-60 ppbv le profil moyen de CO observé dans la moyenne et la basse troposphère. Les deux simulations montrent ainsi des différences importantes dans ces deux régions. Ces différences peuvent s'expliquer par la différence des émissions anthropiques et biogéniques utilisées en Afrique de l'Ouest et des émissions des feux de biomasse utilisées en Afrique centrale. Ces dernières influencent en effet la composition chimique de la troposphère notamment au dessus du Golfe de Guinée comme le montrent les colonnes totales de CO observées et simulées (figure 2.4 et 2.5).

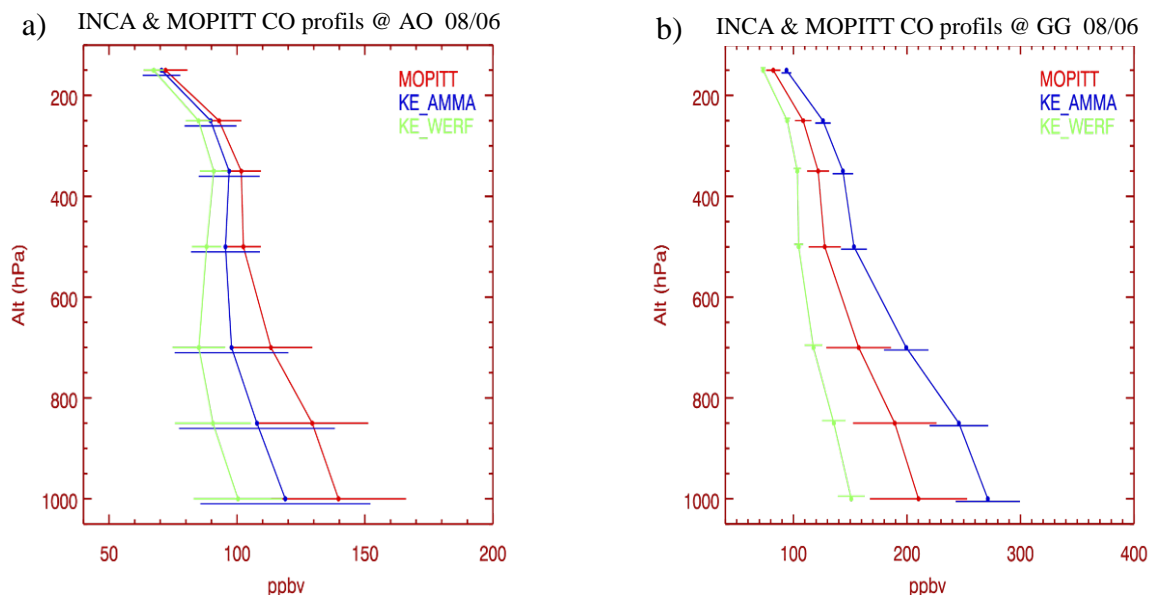


FIG. 2.9 - Profils verticaux de CO (en ppbv) observés par MOPITT (rouge) et simulés par KE\_AMMA (bleu) et KE\_WERF (vert) ; profils moyennés en août 2006 sur les régions AO (a) et GG (b).

### Variabilité saisonnière des colonnes de CO

La figure 2.10 représente la variabilité saisonnière des colonnes moyennes de CO observées par MOPITT et simulées par le modèle au dessus de l'Afrique équatoriale en 2006. Les colonnes de CO ont été moyennées mensuellement sur les régions AC, OA, AO et GG (figure 2.6). La simulation KE\_WERF reproduit correctement les observations MOPITT dans les régions AC et OA entre janvier et août mais sous-estime d'environ 10-20% les colonnes de CO observées entre septembre et novembre. Aussi, le maximum observé en septembre dans la région AC est simulé un mois à l'avance (en août).

La simulation KE\_AMMA reproduit en général correctement les valeurs observées dans ces deux régions (AC et OA) entre janvier et mai et entre septembre et décembre. Cette simulation surestime cependant les valeurs observées dans ces deux régions entre juin et août. KE\_AMMA simule un mois à l'avance le maximum des colonnes de CO observé en septembre dans la région OA. Dans la région AC, le maximum observé en septembre est simulé en juillet donc deux mois à l'avance.

Au dessus de la région AO, les deux simulations reproduisent les maximums observés par MOPITT entre octobre et janvier mais sous-estiment d'environ 10% les valeurs observées. Les deux simulations sous-estiment aussi de 20-30% les valeurs observées au printemps entre février et juin. C'est la simulation KE\_AMMA qui reproduit mieux les observations MOPITT entre juillet et août dans la région AO. La simulation KE\_WERF les sous-estime d'environ 10-20%. Dans la région GG, les deux simulations reproduisent correctement les observations MOPITT entre octobre et janvier mais sous-estiment de 20-30% les valeurs observées entre février et mai. Les colonnes de CO observées entre juin et août dans cette région sont sous-estimées de 10-30% par la simulation KE\_WERF et surestimées de 20-60% par la simulation KE\_AMMA. Le maximum observé en août dans cette région est simulé en juillet dans les deux simulations.

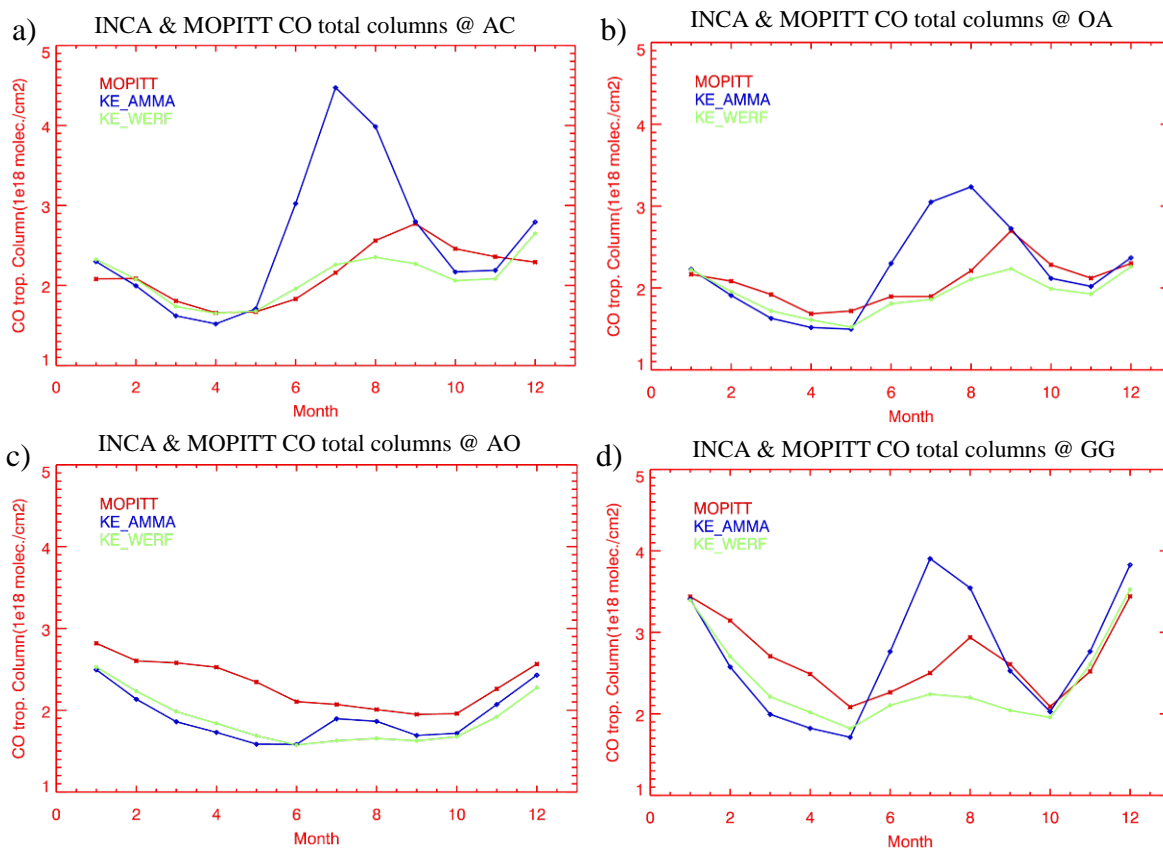


FIG. 2.10 - Variabilité saisonnière des colonnes de CO ( $10^{18}$  molécules/cm<sup>2</sup>) observées par MOPITT (rouge) et simulées par KE\_AMMA (bleu) et KE\_WERF (vert) en 2006 ; moyennes mensuelles sur les régions AC (a), OA (b), AO (c) et GG (d).

### Conclusion

Les résultats des sections précédentes montrent que d'une manière générale les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF reproduisent correctement la distribution spatiale des observations de CO de MOPITT. Les régions polluées et moins polluées dans chaque hémisphère sont également correctement simulées. Les deux simulations sous-estiment cependant les valeurs observées en janvier et en août dans l'hémisphère nord. Ce désaccord a également été constaté dans de précédentes comparaisons de LMDz\_INCA avec les données MOPITT (Shindell et al., 2006 ; Turquety et al., 2008). Shindell et al. (2006) ont montré que beaucoup de modèles globaux ont tendance à sous-estimer le CO dans l'hémisphère nord, principalement à cause d'une sous-estimation des émissions de CO, notamment en Asie du sud et d'une surestimation de OH.

En Afrique équatoriale, la simulation KE\_AMMA donne de meilleurs résultats en Afrique de l'Ouest pendant l'été boréal mais surestime les colonnes et les profils verticaux de CO observés par MOPITT en Afrique centrale, au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée. La simulation KE\_WERF sous-estime les observations MOPITT en Afrique de l'Ouest mais donne de meilleurs résultats dans les autres régions. Cette étude a montré la difficulté des deux simulations à reproduire correctement le cycle saisonnier des colonnes de CO observées par MOPITT pendant l'été boréal, notamment en Afrique centrale et au Golfe de Guinée. Cela est probablement dû à un problème de cycle saisonnier dans les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale utilisées. Cette étude a montré aussi combien le modèle est sensible aux différences entre les cadastres d'émissions AMMA et WERF. Une analyse plus approfondie des résultats des deux simulations sera effectuée dans les chapitres 3, 4 et 5 avec notamment des comparaisons aux données in-situ de la campagne AMMA.

### 2.6.2 Distribution de NO<sub>2</sub>

L'instrument SCIAMACHY (SCanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CHartographY en anglais) (Bovensmann et al., 1999) mesure le rayonnement solaire, transmis, réfléchi et diffusé par la surface terrestre ou l'atmosphère, dans la bande spectrale 220 – 2240 nm. Lancé le 1<sup>er</sup> mars 2002 à bord du satellite ENVISAT, il est opérationnel depuis août 2002 et offre une résolution moyenne de 30 x 60 km<sup>2</sup>. Il observe l'atmosphère sous deux angles différents : vers le bas, en visée au « nadir » et dans la direction de vol. A partir de ces observations, les colonnes troposphériques de plusieurs espèces chimiques (O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, HCHO, BrO, OCIO) peuvent être calculées en utilisant la technique de la spectroscopie d'absorption optique différentielle (DOAS pour Differential Optical Absorption Spectroscopy en anglais) (Richter and Burrows, 2002). Cette méthode est un processus de filtrage complexe qui, après suppression du bruit spectral, permet de détecter des signatures de gaz en quantités infimes. Avec une fauchée de 960 km, SCIAMACHY balaye la totalité de la planète tous les six jours.



Les colonnes troposphériques de NO<sub>2</sub> de LMDz\_INCA, utilisées dans cette section, ont été calculées en intégrant les concentrations de la surface à la tropopause. Dans le modèle, la tropopause est calculée suivant la définition officielle donnée par l'organisation mondiale de la météorologie (WMO 1992, World Meteorological Organization, en anglais) : la tropopause est la frontière inférieure d'une couche dans laquelle la température décroît de moins de 2° K/km sur une épaisseur d'au moins 2km. Cette définition est souvent appelée “définition thermique” de la tropopause. Comme dans la comparaison avec MOPITT, les colonnes du modèle ont été calculées à l'heure locale de passage du satellite, soit à 10h. Ce calcul est nécessaire pour les colonnes de NO<sub>2</sub> étant donné sa forte variation diurne.

La figure 2.11 montre les colonnes troposphériques de NO<sub>2</sub> observées par SCIAMACHY en janvier et août 2006, et calculées dans la simulation KE\_AMMA. Le modèle reproduit correctement les régions fortement polluées dans l'hémisphère nord (Est des Etats-Unis, Europe occidentale, Nord de l'Inde, Nord-Est de la Chine et Japon). Le modèle reproduit également le maximum en janvier dans ces régions, lié à la durée de vie plus longue de NO<sub>2</sub> en hiver. Cependant, ces zones polluées sont moins étendues dans le modèle, notamment aux Etats-Unis et en Chine, et les colonnes de NO<sub>2</sub> observées par SCIAMACHY sont globalement sous-estimées (inférieures à  $6.10^{15}$  molécules/cm<sup>2</sup>). L'évolution des émissions anthropiques dans ces régions industrielles, notamment en Chine, pourrait expliquer ces désaccords. En effet, les émissions de l'inventaire RETRO sont représentatives de l'année 2000. Ce désaccord avec SCIAMACHY peut également être dû à la faible résolution spatiale du modèle qui peut conduire au “lissage” des valeurs simulées. La sous-estimation des colonnes de NO<sub>2</sub> par LMDz\_INCA dans les régions polluées des pays industriels a également été constatée par van Noije et al. (2006) dans un exercice d'intercomparaison de plusieurs modèles avec les colonnes de NO<sub>2</sub> de l'instrument GOME (Global Ozone Monitoring Experiment). L'incertitude qui subsiste dans les mesures satellites de SCIAMACHY (van Noije et al., 2006 ; Turquety et al., 2008) peut également expliquer le désaccord entre les résultats du modèle et les observations.

En Afrique équatoriale, le modèle reproduit correctement les colonnes de NO<sub>2</sub> observées dans les régions polluées par les feux de biomasse en janvier (hémisphère nord) et en août 2006 (Afrique centrale). La zone polluée en janvier est cependant moins étendue dans le modèle et le maximum est simulé en Afrique de l'Est. SCIAMACHY détecte en effet de fortes émissions au Cameroun et au Nigeria, en janvier, dues principalement aux feux de biomasse et aux émissions industrielles au Nigeria. Ce désaccord entre le modèle et SCIAMACHY peut s'expliquer par une différence dans la distribution spatiale des émissions utilisées ou par la faible intensité des émissions de NO<sub>x</sub> au Nigeria et au Cameroun. En août 2006, le modèle reproduit assez bien les valeurs et la distribution spatiale des colonnes de NO<sub>2</sub> observées en Afrique centrale. La distribution des NO<sub>x</sub> dans la troposphère en Afrique pendant l'été boréal sera examinée de façon plus approfondie dans les chapitres 3 et 4.

## 2.6 Evaluation des simulations de LMDz\_INCA.

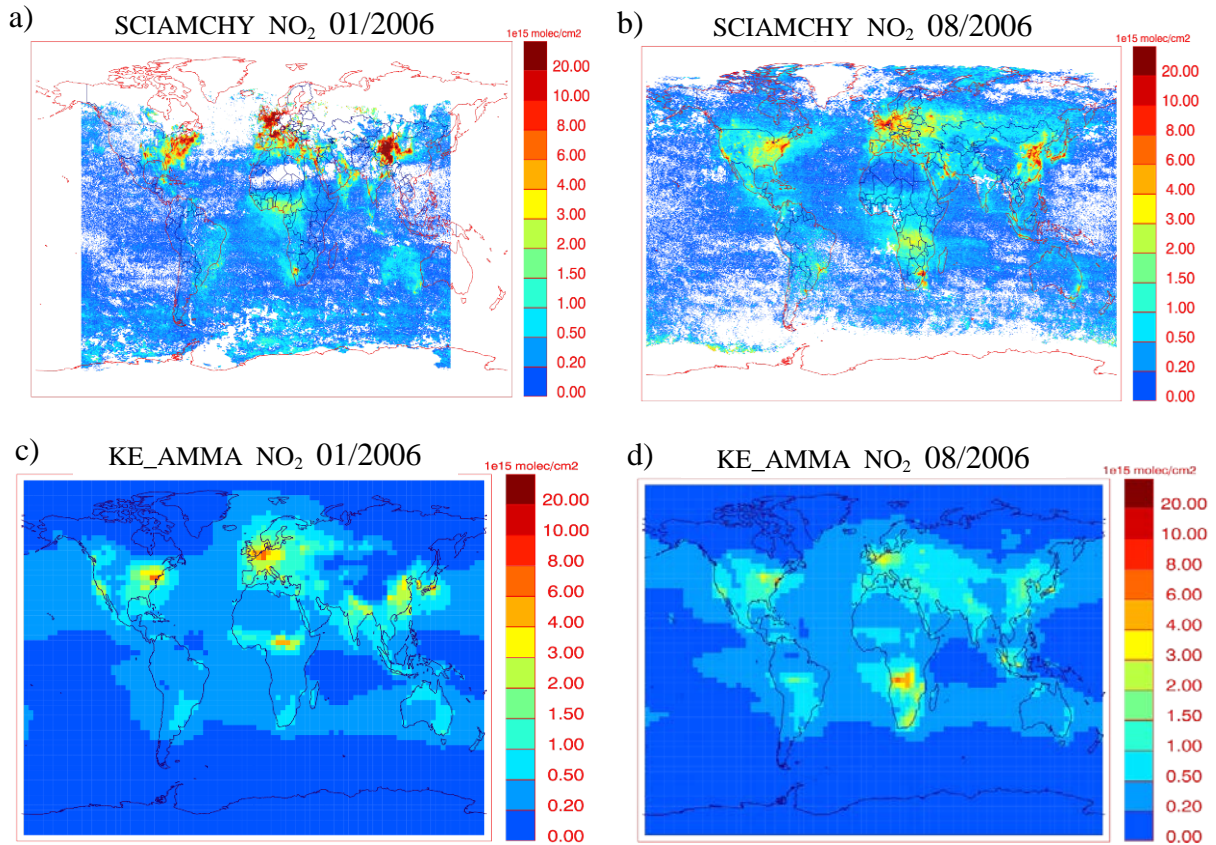


FIG. 2.11 - Colonnes troposphériques de NO<sub>2</sub> ( $10^{15}$  molécules/cm<sup>2</sup>) en janvier (gauche) et août (droite) observées par SCIAMACHY (a, b) et simulées par KE\_AMMA (c, d).

### Variabilité saisonnière des colonnes troposphériques de NO<sub>2</sub>

La figure 2.12 représente la variabilité saisonnière des colonnes troposphériques de NO<sub>2</sub> observées par SCIAMACHY et calculées par les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF, moyennées mensuellement sur les régions AO et AC (figure 2.6). La variabilité saisonnière des colonnes de NO<sub>2</sub> observées est en général bien reproduite par les deux simulations dans la région AO. Le modèle reproduit les maximums observés en hiver et l'augmentation des valeurs en été entre mai et août. La simulation KE\_WERF reproduit mieux les valeurs observées entre janvier et mars 2006. La simulation KE\_AMMA les sous-estime de 10-20%. En novembre et décembre, c'est KE\_AMMA qui reproduit mieux les valeurs observées. KE\_WERF les surestime de 10-30%. Ces différences entre les deux simulations indiquent qu'elles sont dues à des différences entre l'intensité des émissions des feux de biomasse et des émissions anthropiques utilisées en Afrique de l'Ouest. Pendant l'été boréal, quand l'activité des feux de biomasse est faible dans cette région, les deux simulations sous-estiment d'environ 10-20% les valeurs des colonnes de NO<sub>2</sub> observées. Ce désaccord est probablement dû à une sous-estimation des émissions de NO<sub>x</sub> par les sols dans cette région pendant l'été boréal. Ces émissions sont définies suivant la paramétrisation de Yienger and Levy (1995) avec un total global de 5.5 Tg(N)/an. Jaeglé et al. (2004) ont montré une augmentation significative des concentrations de NO<sub>x</sub> au Sahel pendant la



saison humide. Récemment, Stewart et al. (2008) ont également montré, en analysant les données de la campagne AMMA, une forte production de  $\text{NO}_x$  par les sols au Sahel après de fortes précipitations.

Au dessus de la région AC (figure 2.6), les deux simulations sous-estiment d'environ 30-40% les valeurs observées entre janvier et mai et entre septembre et décembre. Ce désaccord est probablement dû à une sous-estimation des émissions anthropiques dans ces régions. van Noije et al. (2006) ont montré que les modèles utilisés, y compris LMDz\_INCA, sous-estiment d'un facteur 2 les colonnes de  $\text{NO}_2$  observées par GOME en Afrique centrale pendant l'hiver boréal. Les valeurs maximums observées en septembre et en octobre sont simulées, avec un décalage de un mois, en août et en septembre. L'influence des émissions feux de biomasse dans cette région explique ces fortes valeurs. La simulation KE\_WERF sous-estime cependant de 20-30% les valeurs élevées observées dans la région AC entre juin et août 2006. La simulation KE\_AMMA reproduit bien les valeurs observées en août mais les surestime en juin et juillet. Ces désaccords entre les deux simulations et les observations de SCIAMACHY dans la région AC, peuvent être dus à des incertitudes dans l'intensité des émissions de  $\text{NO}_x$  par les feux de biomasse. Ils peuvent également être dus aux incertitudes dans les mesures satellites de SCIAMACHY (van Noije et al., 2006). Cette étude montre ainsi que les émissions de  $\text{NO}_x$  par les feux de biomasse en Afrique centrale sont faibles dans le cadastre d'émissions WERF et surestimées dans le cadastre d'émissions AMMA en juin et en juillet 2006. Cette étude montre également qu'il y a un problème dans le cycle saisonnier des émissions de  $\text{NO}_x$  par les feux de biomasse en Afrique centrale, utilisées par les deux simulations.

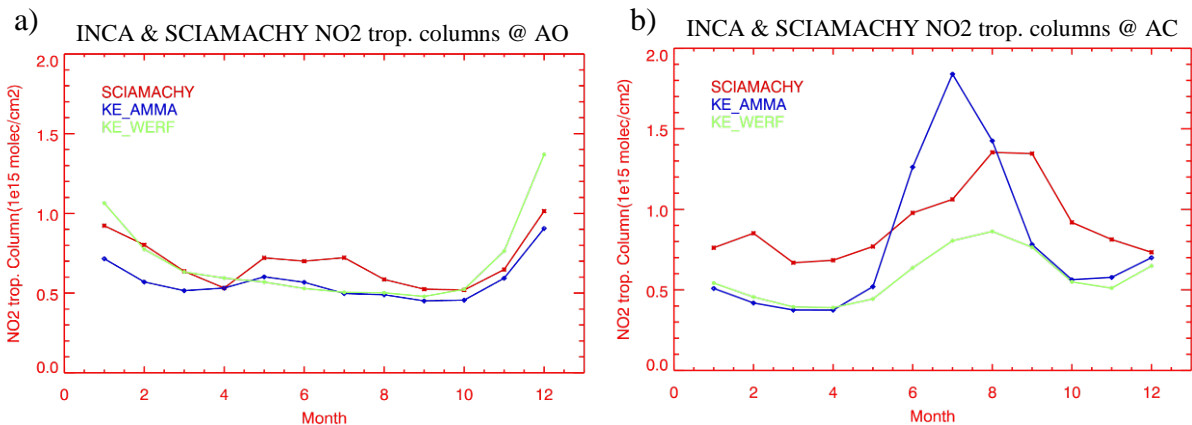


FIG. 2.12 - Variabilité saisonnière des colonnes troposphériques de  $\text{NO}_2$  ( $10^{15}$  molécules/cm<sup>2</sup>) observées par SCIAMACHY (rouge) et simulées par KE\_AMMA (bleu) et KE\_WERF (vert) en 2006 ; Colonnes moyennées mensuellement sur les régions AO (a) et AC (b).

### 2.6.3 Distribution de HCHO

La figure 2.13 représente les colonnes totales de HCHO calculées par la simulation KE\_AMMA et observées par SCIAMACHY en janvier et août 2006. Les valeurs élevées observées en janvier dans les régions des feux de biomasse près du Golfe de Guinée sont bien simulées par le modèle. Cependant, les maximums observés sont sous-estimés. Le maximum simulé est inférieur à  $18 \times 10^{15}$  molécules/cm<sup>2</sup> alors que les valeurs observées dans ces régions dépassent  $20 \times 10^{15}$  molécules/cm<sup>2</sup>.

En août, le modèle reproduit bien les valeurs élevées des colonnes de HCHO observées dans les régions industrielles de l'hémisphère nord (Est des Etats-Unis, Europe, moyen orient, Inde, Nord-Est de la chine, Japon et Corée). Toutefois, les maximums observés sont sous-estimés, notamment en Asie, au moyen orient et aux Etats-Unis. Ce désaccord peut être dû à une sous-estimation des émissions anthropiques utilisées dans ces régions. Dans les régions tropicales, la simulation KE\_AMMA reproduit bien les valeurs élevées des colonnes de HCHO observées en Afrique centrale et en Amérique latine, dues aux émissions de HCHO par les feux de biomasse. Les valeurs observées en août en Afrique de l'Ouest, dues aux émissions biogéniques, sont sous-estimées par le modèle. La comparaison des résultats de la simulation KE\_AMMA aux observations de la campagne AMMA, présentée au chapitre 3, montre une forte destruction chimique de HCHO dans la simulation KE\_AMMA en Afrique de l'Ouest. Cela peut expliquer ainsi les désaccords constatés entre les résultats du modèle et SCIAMACHY dans cette région. Ces désaccords peuvent également être dus aux incertitudes dans les mesures de SCIAMACHY, notamment celles de HCHO.

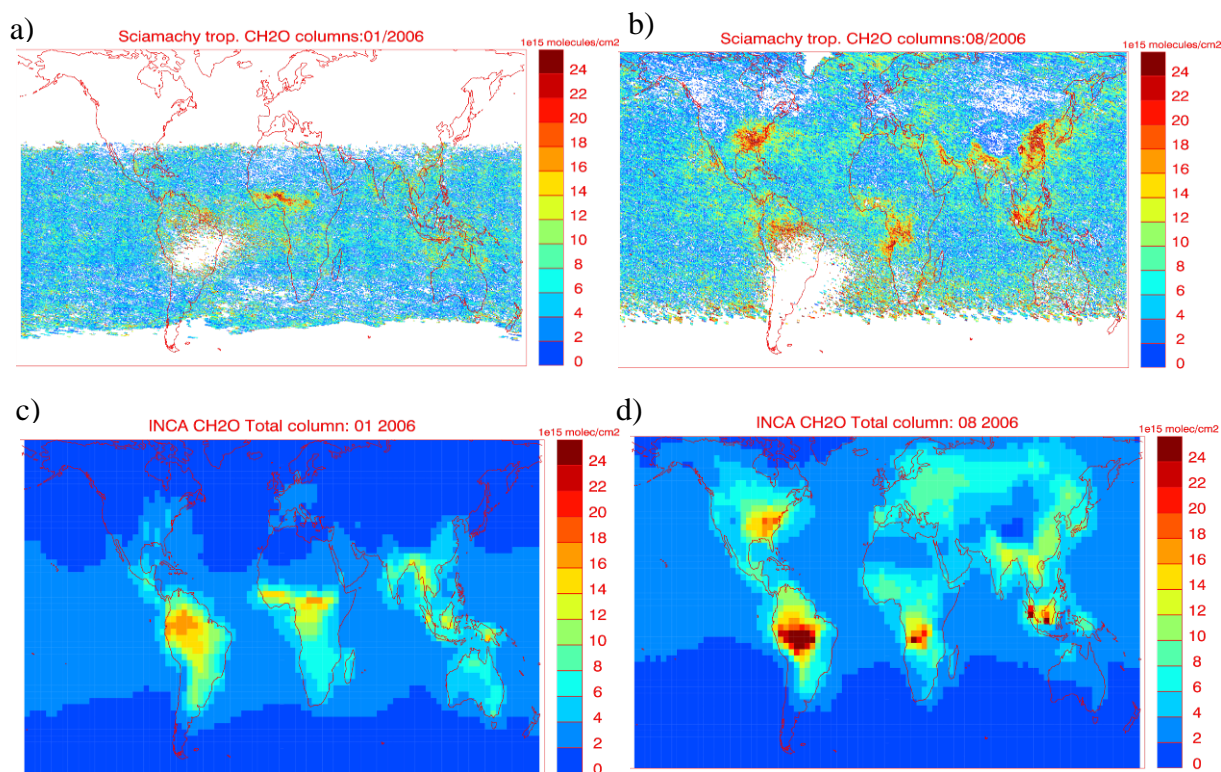


FIG. 2.13 - Colonnes totales de HCHO ( $10^{15}$  molécules/cm<sup>2</sup>) en janvier (gauche) et août (droite) observées par SCIAMACHY (a, b) et simulées par KE\_AMMA (c, d).

## Variabilité saisonnière des colonnes de HCHO

La figure 2.14 représente la variabilité saisonnière des colonnes de HCHO observées par SCIAMACHY en 2006 et calculées par les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF, moyennées mensuellement sur les régions AO et AC (figure 2.5). Les données SCIAMACHY pour 2006 sont disponibles de janvier à octobre. Les deux simulations sous-estiment d'environ 10-40 % les valeurs observées entre janvier et avril dans la région AO. La simulation KE\_WERF reproduit mieux les colonnes de HCHO observées entre mai et août. Le pic observé en juillet, probablement dû aux émissions biogéniques de HCHO, est par contre sous-estimé d'environ 15%. Entre août et octobre, cette simulation surestime d'environ 10% les valeurs observées. La simulation KE\_AMMA a tendance à sous-estimer les valeurs observées sur presque toute l'année. En été boréal, les valeurs simulées sont inférieures d'environ 15% et le pic observé en juillet n'est pas reproduit par cette simulation. Comme indiqué précédemment, ce désaccord entre KE\_AMMA et SCIAMACHY peut être dû à une forte destruction de HCHO dans cette simulation mais aussi aux incertitudes dans les observations.

Dans la région AC, c'est la simulation KE\_AMMA qui reproduit mieux la variabilité des colonnes de HCHO. L'augmentation des valeurs observées entre mai et octobre, due aux émissions de HCHO par les feux de biomasse, est bien simulée mais les valeurs observées sont sous-estimées, notamment en juillet. La simulation KE\_WERF ne reproduit pas la variabilité saisonnière des observations et a tendance à surestimer les valeurs observées en hiver et au printemps et à les sous-estimer en été.

Cette étude montre ainsi que les différences dans les émissions biogéniques et dans les émissions des feux de biomasse de HCHO entre les inventaires AMMA et WERF, peuvent expliquer en partie les différences entre leurs résultats. La forte destruction de HCHO dans KE\_AMMA en Afrique de l'Ouest peut expliquer aussi la différence de leurs résultats dans cette région.

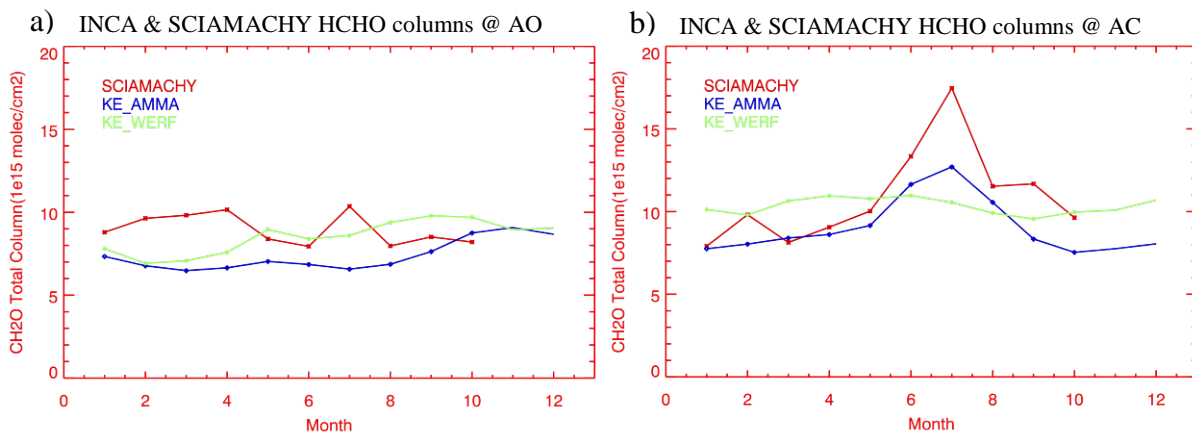


FIG. 2.14 - Variabilité saisonnière des colonnes troposphériques de HCHO (10<sup>15</sup> molécules/cm<sup>2</sup>) observées par SCIAMACHY (en rouge) et simulées par KE\_AMMA (bleu) et KE\_WERF (vert) en 2006 ; Colonnes moyennées mensuellement sur les régions AO (a) et AC (b).

### 2.6.4 Distribution de l'ozone

L'instrument TES (Tropospheric Emission Spectrometer en anglais), lancé par la NASA le 15 juillet 2004 à bord de la station EOS-Aura, permet de mesurer la distribution globale et verticale de l'ozone troposphérique et de plusieurs autres espèces chimiques ( $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{HNO}_3$ ) (Beer et al., 2001, 2006). Il effectue des observations en visée au nadir et dans la direction de vol. Il passe au niveau de l'équateur à 13h45 et 1h 45 en heure locale et effectue une couverture globale en 16 jours. La figure 2.15 montre les colonnes troposphériques de l'ozone calculées par les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF et observées par TES en janvier et août 2006. Les colonnes d' $\text{O}_3$  du modèle sont calculées à environ 13h45, heure locale de passage du satellite, en intégrant les concentrations d' $\text{O}_3$  de la surface jusqu'à la tropopause.

En général, les deux simulations reproduisent bien les gradients positifs des colonnes de l'ozone, observés entre les régions équatoriales et les régions sub-tropicales en janvier et en août 2006. Les simulations reproduisent aussi l'augmentation des valeurs des colonnes d' $\text{O}_3$  dans l'hémisphère nord et dans l'océan Atlantique en août, due à l'augmentation des quantités d'émissions biogéniques et des feux de biomasse pendant l'été boréal dans ces régions. Les valeurs élevées observées et simulées dans les régions sub-tropicales sont associées aux fortes émissions de précurseurs d' $\text{O}_3$  dans ces régions (Europe, Asie, Amérique du nord, Afrique), au transport intercontinental qui contribue notamment à l'ozone dans les océans (Atlantique, Pacifique et Indien) et aux intrusions stratosphériques (Li et al., 2002b ; Lawrence, 2004 ; Creilson et al., 2003 ; Fishman et al., 1997, 2003). Les faibles valeurs observées et simulées dans les parties tropicales des océans Pacifique et Indien peuvent s'expliquer par les faibles valeurs de  $\text{NO}_x$  (figure 2.9) et par l'importante destruction photochimique de l'ozone dans ces régions éloignées des régions polluées.

En Afrique, le gradient d' $\text{O}_3$  en août peut être associé au transport convectif de masses d'air pauvres en ozone depuis les basses couches de la troposphère vers la haute troposphère, et à la production photochimique d' $\text{O}_3$  (e.g. par les  $\text{LiNO}_x$ ) dans les branches de retour des cellules de Hadley (Folkins et al., 2002a ; Sauvage et al., 2007a). Le modèle reproduit également le maximum de l'ozone au dessus de l'Atlantique observé toute l'année, connu sous la nomination « wave-one » (Fishman et al., 1990 ; Thompson et al., 2003 ; Sauvage et al. 2007b). Une analyse approfondie de la distribution de l'ozone en Afrique équatoriale sera présentée aux chapitres 3, 4 et 5.

Cependant, les simulations sous-estiment de 20-30% les valeurs observées dans les hautes latitudes (Canada, Russie) en janvier, probablement à cause de la sous-estimation des émissions anthropiques dans ces régions. Les valeurs observées entre le moyen orient et l'Asie centrale en août sont surestimées dans les deux simulations. Cela peut s'expliquer par une surestimation de l'altitude de la tropopause (tropopause thermique) par LMDz\_INCA, ce qui induit une forte intrusion stratosphérique dans cette région.



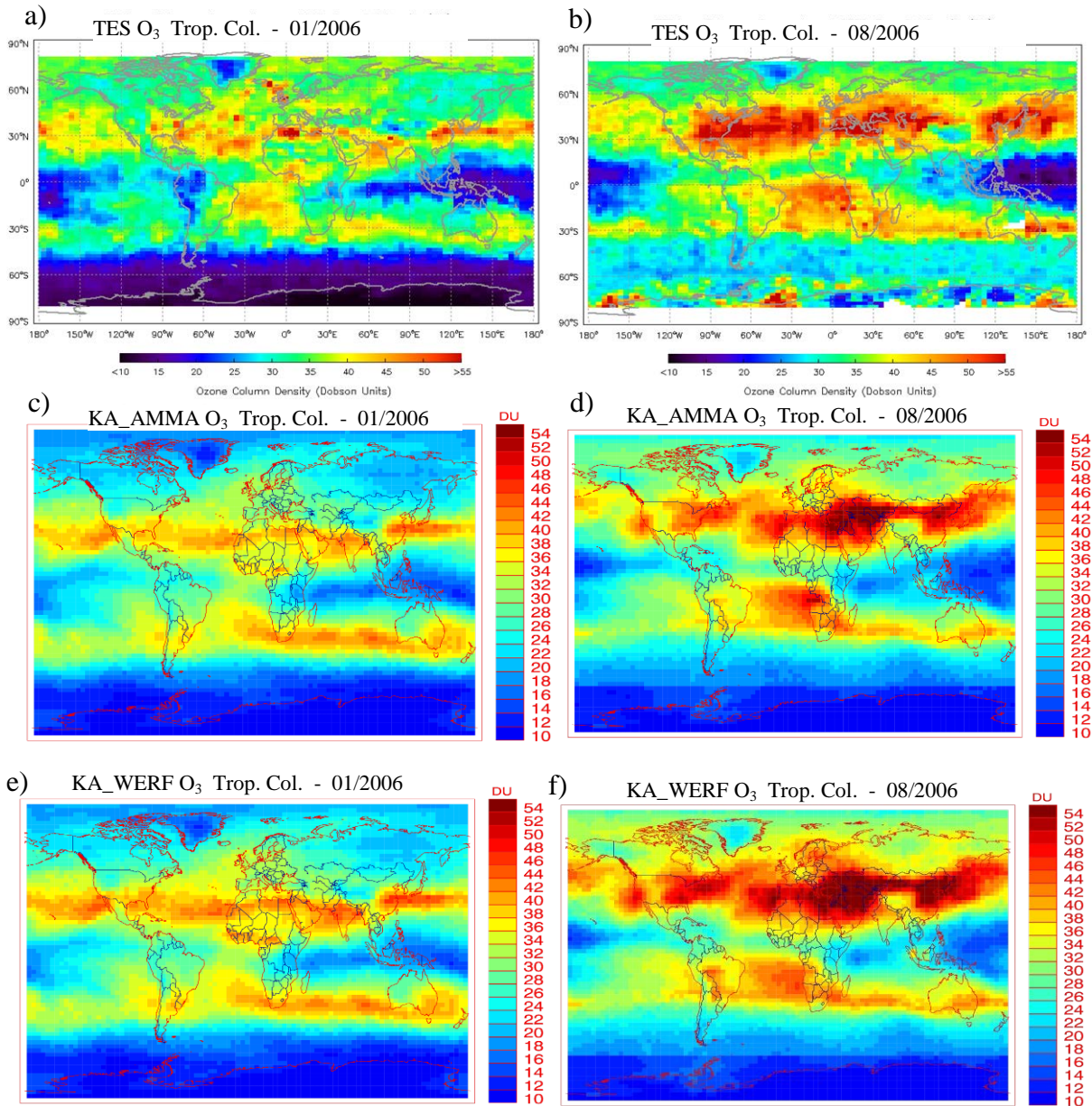


FIG. 2.15 - Colonnes troposphériques moyennes de l'ozone (en DU) en janvier (gauche) et août (droite) observées par TES (a, b) et simulées par KE\_AMMA (c, d) et KE\_WERF (e, f).

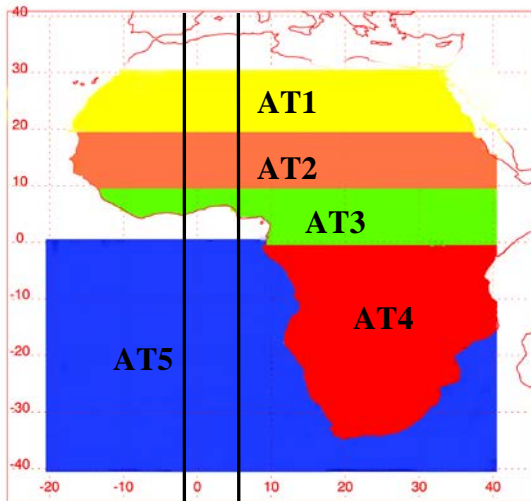
## 2.7 Evaluation de LMDz\_INCA dans le cadre du projet AMMA-MIP

Plusieurs modèles globaux et régionaux ont été utilisés dans le cadre du projet AMMA et des exercices d'intercomparaison ont été organisés entre ces modèles afin de comparer leurs performances. Ces exercices ont donné naissance au projet AMMA-MIP (Model Intercomparison Program en anglais) auquel nous avons participé avec LMDz\_INCA. Trois autres modèles globaux ont participé à ce projet : MOCAGE (Teyssedre et al., 2007), TM4 (Dentener et al., 2003 ; van Noije et al., 2006) et

p-TOMCAT (Law et al., 1998 ; Yang et al., 2005). Plusieurs simulations pour l'année 2006, en utilisant notamment des traceurs inertes, ont été effectuées dans le but de comprendre les différences entre les résultats de ces modèles, qui résultent des différences entre les résolutions spatiales et les paramétrisations des processus physiques utilisées. Afin de mieux comparer les distributions simulées de l'ozone et de ses précurseurs, les simulations ont été réalisées en utilisant les mêmes émissions (émissions AMMA décrites au chapitre 1). Les modèles LMDZ\_INCA, TM4 et p-TOMCAT sont guidés par les champs météorologiques du CEPMMT. Le modèle MOCAGE a utilisé des champs météorologiques issus du modèle ARPEGE-Tropiques (Déqué et al., 1994). Les résultats de l'intercomparaison de ces modèles ont fait d'une publication (Williams et al., 2010) présentée dans l'Annexe A.

Les traceurs inertes utilisés ont été définis au dessus de l'Afrique et de l'océan Atlantique. Un traceur stratosphérique a été également défini afin d'étudier l'influence de l'intrusion stratosphérique sur la troposphère en Afrique de l'Ouest. Le tableau 2.3 et la figure 2.16 montrent les régions d'émission de ces traceurs. Le traceur AT1 est défini au dessus du Sahara afin d'étudier l'intrusion à partir de cette région vers l'Afrique de l'Ouest. Les traceurs AT2 et AT3 sont définis de part et d'autre de la ZCIT pour analyser l'impact du transport convectif dans le modèle dans les régions sahéliennes (AT2) et tropicales (AT3) sur la redistribution des émissions depuis la basse troposphère vers la moyenne et la haute troposphère pendant la saison de la mousson. Le traceur AT4, défini au dessus de l'Afrique australe, vise à analyser le transport depuis les régions des feux de biomasse en Afrique centrale vers les autres régions d'Afrique et vers l'océan Atlantique. Le traceur AT5 est défini au dessus de l'océan Atlantique afin d'analyser le transport dans le flux de mousson vers l'Afrique de l'Ouest. Durant les simulations, les concentrations de chaque traceur ont été fixées à 100 pptv à chaque pas de temps de la physique du modèle, soit chaque 30 minutes. Pour palier d'éventuels problèmes de mélange dans les couches limites des modèles, les traceurs sont émis de la surface jusqu'à 850hPa. La durée de vie choisie pour ces traceurs est 20 jours.

L'objectif de cette section est de comparer les distributions latitudinales des traceurs AT2 et AT4, de CO et d'O<sub>3</sub> simulées par les modèles de AMMA-MIP. Les résultats de chaque modèle ont été moyennés sur février et sur août 2006, et sur la région 2°W-6°E (région délimitée par les lignes noires, figure 2.16). Le choix de la zone 2°W-6°E se justifie par le fait que les vols des avions de la campagne AMMA, dédiés à l'étude du transport à longue distance, ont eu lieu dans cette région. Cela permettra donc de comparer les résultats des modèles aux observations AMMA.



Traceurs	Latitude
AT1 (Sahara)	20-30°N
AT2 (Sahel)	10-20°N
AT3 (Golfe de Guinée)	0-10°N
AT4 (Afrique Australe)	0-40°S
AT5 (Océan Atlantique)	0-40°S
ST (Stratosphère)	Global

TAB. 2.3 – Traceurs inertes utilisés pour l’intercomparaison de modèles AMMA-MIP.

FIG. 2.16 – Régions d’émissions des traceurs AT1, AT2, AT3, AT4 et AT5; les lignes noires délimitent la région où sont moyennés les résultats des modèles (2°W-6°E).

### Distribution des traceurs AT2 et AT4

La figure 2.17 montre la distribution du traceur AT2 dans chaque modèle en février et en août 2006. En février, le traceur dans LMDz\_INCA est transporté jusqu’à l’équateur par le flux d’Harmattan dans la basse troposphère. Il est ensuite transporté vers la moyenne troposphère au niveau de la ZCIT vers 5°N sous l’influence de la convergence des flux d’Harmattan et des alizés de Sud-Est. En comparaison avec les autres modèles, LMDz\_INCA simule une distribution de AT2 en général similaire à celle des modèles TM4 et p-TOMCAT. En août, LMDz\_INCA simule une augmentation des concentrations de AT2 dans la moyenne et la haute troposphère au dessus du Sahel. Le transport vertical engendré par la convergence des flux d’Harmattan et des flux de mousson au niveau de la ZCIT vers 10°N, explique ces valeurs élevées de AT2. Le modèle simule une distribution de AT2 presque similaire à celle de TM4. Il simule toutefois plus de concentrations de AT2 dans la haute troposphère en comparaison avec TM4 et p-TOMCAT à cause notamment de la différence entre les schémas de convection utilisés. La distribution verticale de AT2 dans LMDz\_INCA, diffère de celle simulée par MOCAGE aussi bien en février qu’en août 2006, à cause d’un transport convectif plus puissant dans MOCAGE (Williams et al., 2010). Les modèles TM4 et p-TOMCAT simulent également moins de concentrations de AT2 dans la moyenne et la haute troposphère en comparaison avec MOCAGE.

## 2.7 Evaluation de LMDz\_INCA dans le cadre du projet AMMA-MIP.

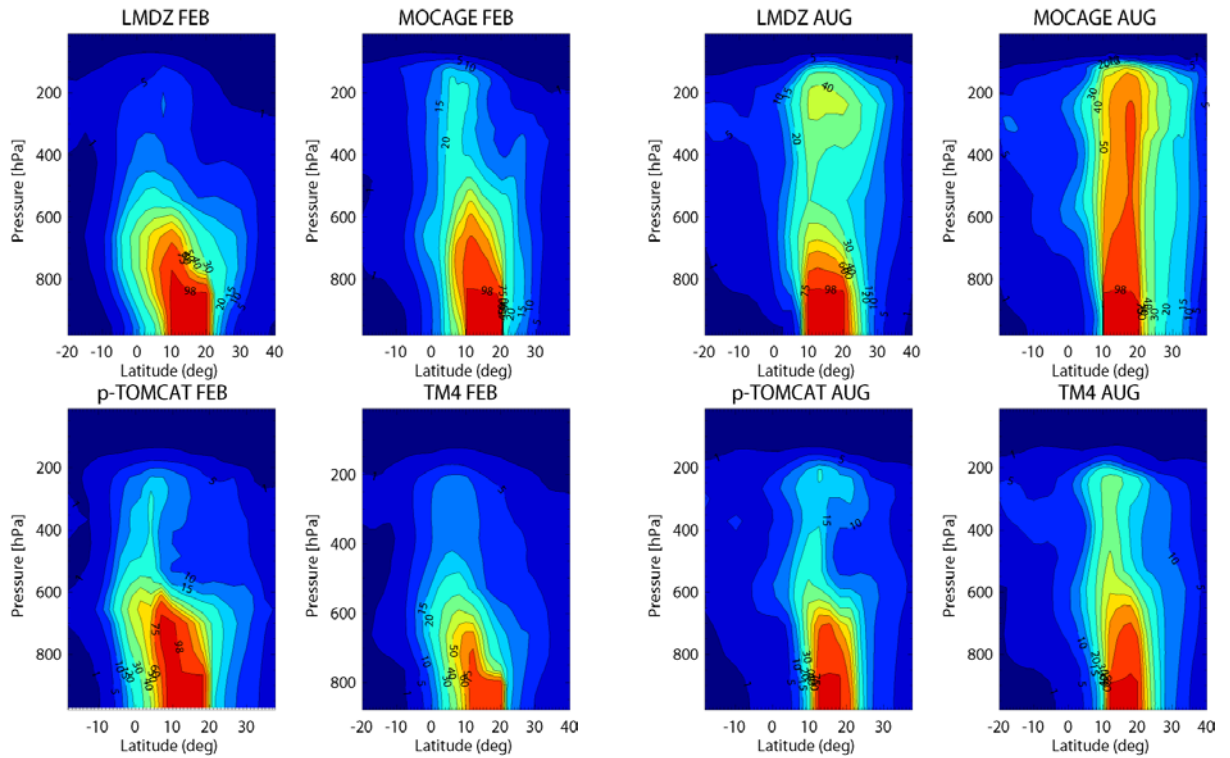


FIG. 2.17 – Distributions latitudinales du traceur AT2 simulées par LMDz\_INCA, MOCAGE, p\_TOMCAT et TM4; moyenne mensuelle en février et août 2006 entre 2°W-6°E (Williams et al., 2010).

La figure 2.18 montre les résultats des modèles pour le traceur AT4 émis en Afrique centrale. La distribution de ce traceur permet d'analyser le transport à partir de l'Afrique centrale et de comprendre ainsi jusqu'où les émissions dans cette région peuvent être redistribuées dans l'atmosphère. En février, LMDz\_INCA simule des concentrations élevées de AT4 dans la haute troposphère entre 100hPa et 400hPa au sud de l'équateur. Le traceur est en effet injecté vers les hautes altitudes au niveau de la ZCIT, située en Afrique centrale pendant l'hiver boréal. La distribution du traceur dans le modèle est similaire à celles simulées par TM4 et p-TOMCAT. Les concentrations de AT4 dans la haute troposphère sont cependant plus intenses dans LMDz\_INCA. MOCAGE simule de plus fortes concentrations de AT4 dans la haute troposphère, dues à la forte intensité du transport convectif dans ce modèle. En août 2006, LMDz\_INCA simule des concentrations élevées de AT4 dans la moyenne troposphère entre 850hPa et 600hPa dans la région 15°S-10°N. Le traceur est en effet transporté par l'AEJ dans la moyenne troposphère vers l'océan Atlantique ce qui explique l'augmentation des concentrations dans cette région. Ce transport de l'Afrique centrale vers l'Ouest est également visible sur les cartes des colonnes troposphériques de CO observées par MOPITT et simulées par LMDz\_INCA (figure 2.3). Le modèle simule aussi le transport du traceur vers la haute troposphère entre 10°S-10°N ce qui indique que dans le modèle les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale peuvent être aussi transportées vers la haute troposphère en Afrique équatoriale. Une analyse approfondie de la redistribution de ces émissions vers la haute troposphère sera présentée au chapitre 3. La distribution de AT4 dans le modèle



est similaire à celle de TM4. Le modèle simule cependant des valeurs plus faibles dans la basse troposphère en comparaison avec les autres modèles. Comme pour le traceur AT2, le modèle MOCAGE simule des concentrations de AT4 plus élevées dans la moyenne et la haute troposphère en comparaison avec LMDz\_INCA et les autres modèles.

Cette étude montre ainsi que les différences dans les paramétrisations du transport et des champs météorologiques utilisés par les modèles AMMA-MIP conduisent à des distributions plus ou moins différentes des traceurs AT2 et AT4.

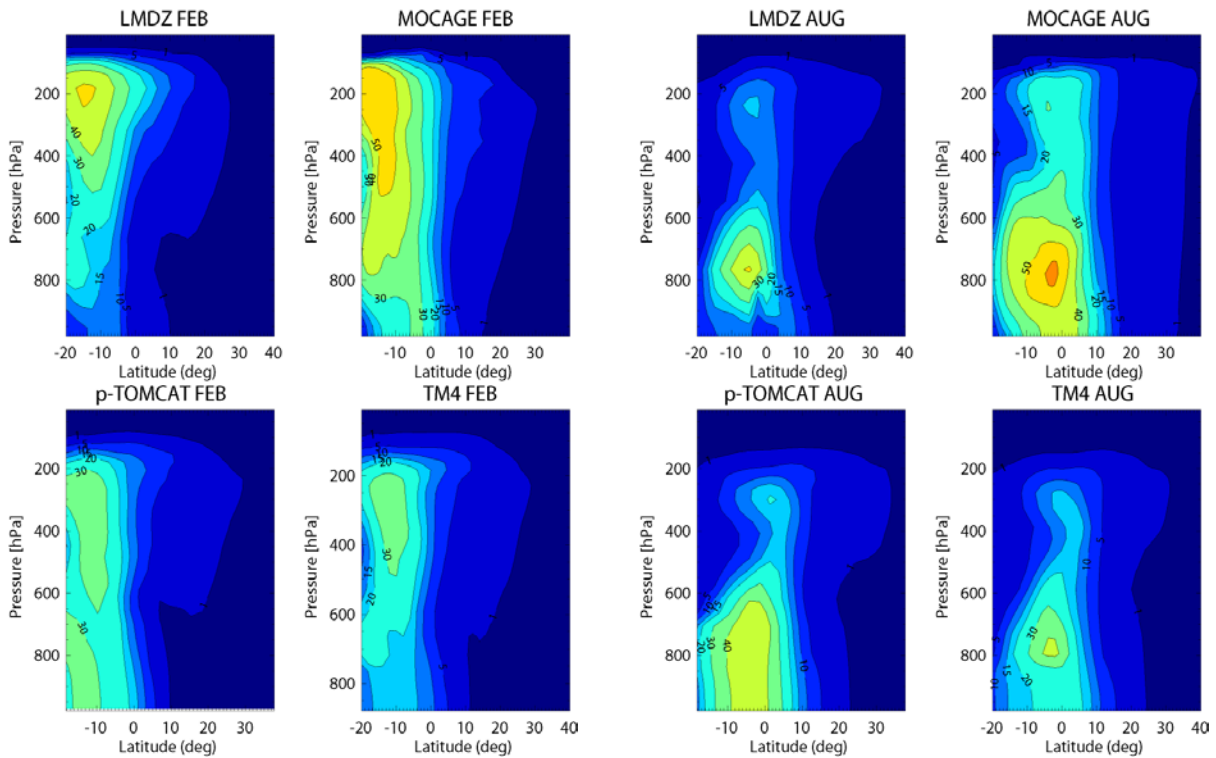


FIG. 2.18 – Distributions latitudinales du traceur AT4 simulées par LMDz\_INCA, MOCAGE, p\_TOMCAT et TM4 en moyennes mensuelles en février et août 2006 et entre 2°W-6°E (Williams et al., 2010).

### Distribution de CO et d'O<sub>3</sub>

La figure 2.19 représente les distributions latitudinales de CO simulées par les modèles de AMMA-MIP en février et en août 2006. C'est la simulation KE\_AMMA qui a été utilisée dans cette étude. En février, LMDz\_INCA simule des concentrations élevées de CO (100-150 ppbv) dans presque toute la troposphère entre 5°S et 20°N. Cette augmentation de CO est due en effet aux émissions des feux de biomasse en Afrique, situées au nord de l'équateur pendant l'hiver boréal. Les colonnes totales de CO observées par MOPITT et simulées par le modèle en Afrique en janvier (figures 2.3 et 2.5a) montrent aussi de fortes valeurs des colonnes de CO dues aux émissions des feux de biomasse au nord de l'équateur. TM4 et p-TOMCAT simulent des distributions de CO en février presque similaires à celles de LMDz\_INCA.

## 2.7 Evaluation de LMDz\_INCA dans le cadre du projet AMMA-MIP.

Le modèle MOCAGE simule des concentrations inférieures d'environ 20 ppbv aux résultats de LMDz\_INCA et des autres modèles, indiquant une plus forte destruction de CO.

En août, la distribution de CO dans LMDz\_INCA est similaire à la distribution simulée du traceur AT4 (figure 2.18). Des concentrations d'environ 450 ppbv de CO sont simulées dans la moyenne troposphère au dessus de l'océan Atlantique. Des valeurs de près de 150ppbv et 200ppbv sont simulées respectivement dans la haute et la basse troposphère au dessus du Golfe de Guinée. Comme avec le traceur AT4, LMDz\_INCA simule une distribution de CO similaire à celle de TM4. Cependant, dans la moyenne troposphère, le modèle simule environ 100-150 ppbv de CO de plus que TM4. Le maximum de CO simulé par LMDz\_INCA dans la moyenne troposphère est supérieur d'environ 50ppbv au maximum simulé par p-TOMCAT. En comparaison avec le modèle MOCAGE, LMDz\_INCA simule environ 200ppbv de CO de plus dans la moyenne troposphère. La comparaison des concentrations de OH entre les modèles (non montrée) montre que MOCAGE simule environ 50% de plus de OH par rapport à LMDz\_INCA et aux autres modèles dans la moyenne troposphère. Cela explique les valeurs moins élevées de CO simulées par MOCAGE. LMDz\_INCA simule environ 50ppbv de CO en moins entre 500hPa et 300hPa et environ 20-30 ppbv de CO de plus entre 300hPa et 100hPa en comparaison avec TM4 et p-TOMCAT. Cette différence dans la distribution verticale de CO entre ces modèles peut s'expliquer par la différence de leurs paramétrisations de la convection et de la couche limite.

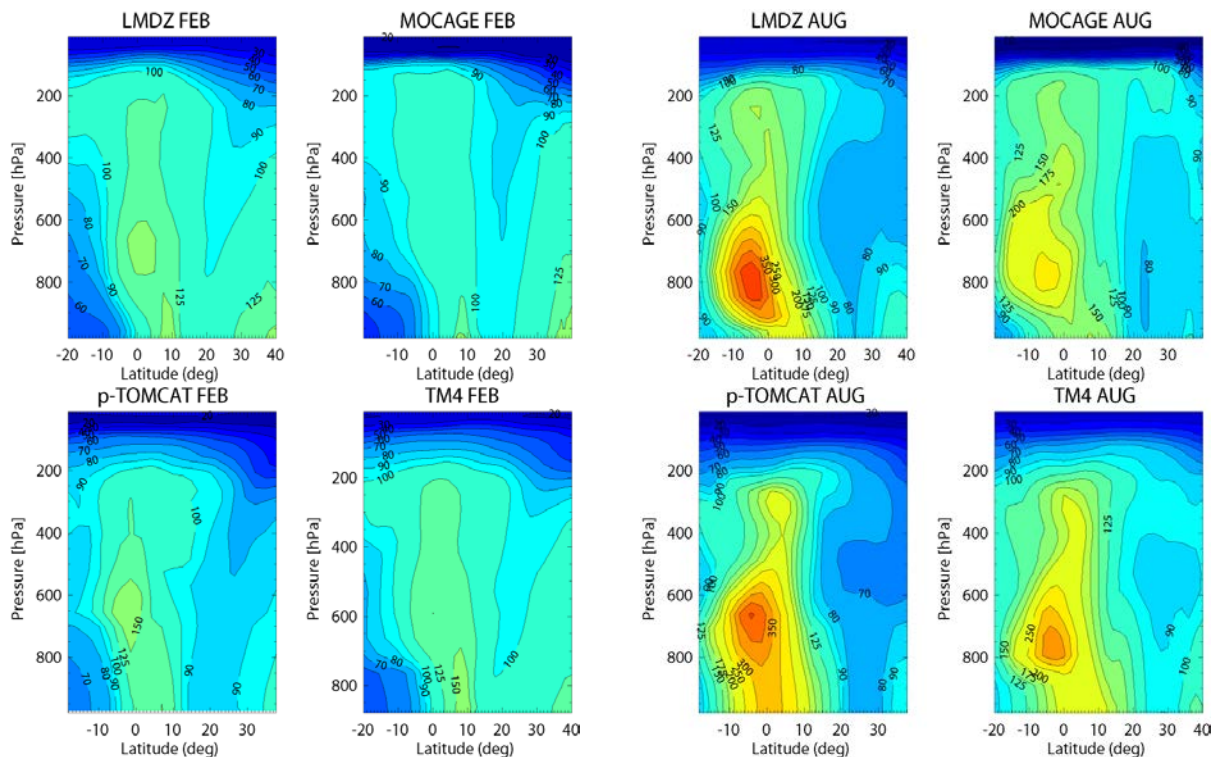


FIG. 2.19 – Distributions latitudinales de CO simulées par LMDz\_INCA, MOCAGE, p\_TOMCAT et TM4 en moyennes mensuelles en février et août 2006 et entre 2°W-6°E (Williams et al., 2010).

La figure 2.20 représente les distributions latitudinales de l’ozone simulées par les modèles. En général, les distributions de l’ozone simulées sont différentes et cela peut s’expliquer par la différence des schémas chimiques utilisés d’une part et des paramétrisations du transport employées d’autre part. LMDz\_INCA simule les plus faibles concentrations de l’ozone en février notamment au nord de l’équateur. Le modèle simule 40-50ppbv d’O<sub>3</sub> dans la basse et moyenne troposphère et 60-100 ppbv dans la haute troposphère. Au nord de 30°N, le modèle simule une augmentation de l’ozone dans la moyenne et la haute troposphère, due au transport de l’ozone depuis la stratosphère. Cette intrusion stratosphérique d’O<sub>3</sub> est simulée également par les autres modèles au nord de 30°N. Elle est cependant plus importante dans les modèles MOCAGE et TM4. Ce dernier simule les plus fortes concentrations de l’ozone dans presque toute la troposphère, aussi bien en février qu’en août 2006.

En août 2006, la distribution de l’ozone dans LMDz\_INCA est similaire à celle de CO et montre des concentrations élevées (70-80 ppbv) dans la moyenne troposphère au dessus de l’océan Atlantique. Le transport de précurseurs d’O<sub>3</sub> depuis les régions des feux de biomasse en Afrique centrale peut expliquer ces valeurs élevées d’O<sub>3</sub>. Les concentrations simulées sont cependant inférieures de 20-30 ppbv à celles calculées par TM4 et MOCAGE. Les concentrations d’O<sub>3</sub> simulées au nord de l’équateur (40-50 ppbv) sont également inférieures de 10-40 ppbv à celles simulées par les autres modèles. Cela indique que la production photochimique de l’ozone est faible dans LMDz\_INCA. Les modèles MOCAGE et TM4 simulent des valeurs élevées d’O<sub>3</sub> (70-100 ppbv) dans la haute troposphère au sud de l’équateur, dues probablement à une intrusion de l’O<sub>3</sub> depuis la stratosphère.

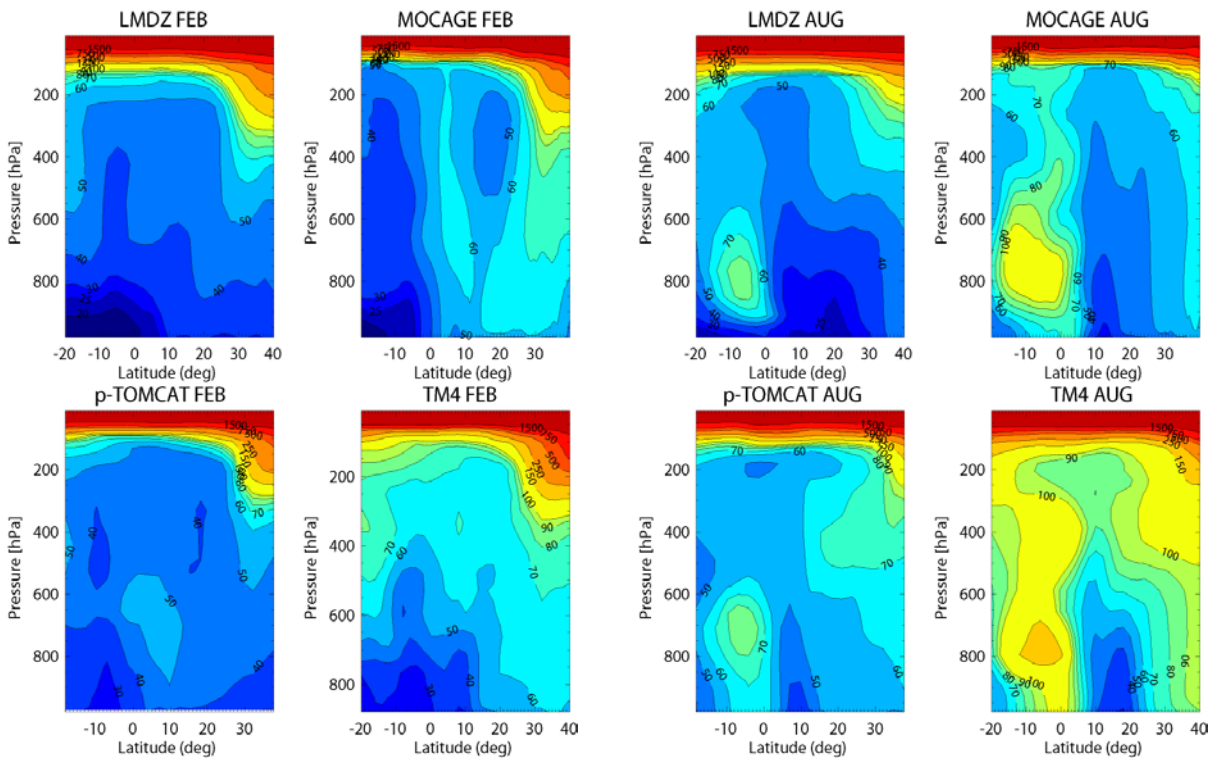


FIG. 2.20 – Distributions latitudinales d’O<sub>3</sub> simulées par LMDz\_INCA, MOCAGE, p\_TOMCAT et TM4 en moyennes mensuelles en février et août 2006 et entre 2°W-6°E (Williams et al., 2010).

Les quelques résultats de l'exercice d'intercompraison de modèles globaux de AMMA\_MIP, présentés dans cette section, montrent des différences significatives dans les distributions des traceurs AT2 et AT4, de CO et d'O<sub>3</sub>, simulées par les modèles. Ces différences peuvent être expliquées par les différentes paramétrisations physiques utilisées notamment les schémas de convection et de la couche limite. L'utilisation de champs météorologiques différents pour guider les modèles peut aussi expliquer les différences observées, notamment entre MOCAGE et les autres modèles. Les différences entre les schémas chimiques utilisés et entre les résolutions spatiales des modèles peuvent également expliquer les différences dans les distributions simulées de l'ozone et de ses précurseurs. Les résultats montrent que le transport convectif dans le modèle MOCAGE est plus intense en comparaison aux autres modèles. La production de l'ozone est plus importante dans TM4, notamment en août, et faible dans LMDz\_INCA.

D'autres résultats de l'exercice d'intercompraison des modèles AMMA-MIP, notamment avec des comparaisons aux observations in-situ de la campagne AMMA, sont présentés dans l'article en Annexe A. L'influence des différentes paramétrisations de la convection et des LiNOx dans ces modèles sur l'ozone et ses précurseurs en Afrique de l'Ouest fera l'objet d'une publication qui est actuellement en préparation (Barret et al., 2010). Une analyse approfondie de la distribution latitudinale et verticale de l'ozone et de ses précurseurs en Afrique de l'Ouest dans LMDz\_INCA sera effectuée dans les prochains chapitres.

## 2.8 Conclusion

L'étude effectuée dans ce chapitre a permis de présenter une évaluation qualitative des performances des simulations effectuées dans cette thèse avec la version LMDz4\_INCA3\_NMHC du modèle LMDz\_INCA. Cette évaluation consiste à comparer les résultats des simulations aux données satellitaires de CO, NO<sub>2</sub>, HCHO et d'O<sub>3</sub>, observées par les instruments MOPITT, SCIAMACHY et TES en 2006. Les cadastres d'émissions AMMA et WERF (voir section 1.5, chapitre 1) ont été utilisés respectivement dans les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF afin d'analyser l'influence des émissions sur les résultats du modèle.

D'une manière générale le modèle reproduit bien les zones polluées observées par MOPITT notamment dans les régions tropicales. Les valeurs observées dans l'hémisphère nord sont cependant sous-estimées par le modèle à cause d'une sous-estimation des émissions de CO et d'une éventuelle surestimation de OH par le modèle. La simulation KE\_AMMA reproduit mieux les colonnes de CO observées en Afrique de l'Ouest et au Golfe de Guinée pendant la saison humide. Elle surestime cependant les valeurs observées en Afrique centrale et au dessus de l'océan Atlantique. KE\_AMMA simule les valeurs maximums observées un mois à l'avance, ce qui indique un désaccord avec MOPITT dans la variation saisonnière des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale.

L'analyse de la distribution globale des colonnes de NO<sub>2</sub> simulées par KE\_AMMA a montré que le modèle reproduit bien les régions polluées de l'hémisphère nord, observées par SCIAMACHY, mais sous-estime les valeurs observées. Ce désaccord

peut s'expliquer par l'évolution des émissions dans les régions industrielles par rapport aux émissions utilisées. L'incertitude qui subsiste sur les mesures satellites de SCIAMACHY peut expliquer aussi le désaccord avec le modèle. En Afrique de l'Ouest, le modèle reproduit la variabilité observée des colonnes de  $\text{NO}_2$  mais sous-estime les valeurs observées pendant la saison humide à cause d'une sous-estimation des émissions de  $\text{NO}_x$  par les sols dans l'inventaire Yienger and Levy (1995) (Jaeglé et al., 2004). La simulation KE\_AMMA surestime les colonnes de  $\text{NO}_2$  observées en juin et juillet 2006 en Afrique centrale à cause de la surestimation des émissions de  $\text{NO}_x$  par les feux de biomasse dans cette région. Comme avec le CO, KE\_AMMA simule aussi un mois à l'avance les valeurs maximums observées en août.

LMDz\_INCA reproduit bien les valeurs élevées des colonnes de HCHO observées par SCIAMACHY dans l'hémisphère nord (Asie, Europe, Etats-Unis). Il sous-estime cependant les maximums observés probablement à cause d'une sous-estimation des émissions anthropiques dans ces régions. Dans les tropiques, le modèle reproduit bien les régions de fortes émissions des feux de biomasse (Afrique et Amérique latine). Il sous-estime cependant les valeurs élevées observées en Afrique. La simulation KE\_AMMA reproduit bien la variabilité saisonnière des colonnes de HCHO en Afrique centrale mais sous-estime les maximums observés pendant l'été boréal. Cela indique une sous-estimation des émissions de HCHO par les feux de biomasse. La simulation KE\_AMMA donne de meilleurs résultats dans cette région en comparaison avec la simulation KE\_WERF. L'incertitude dans les mesures de HCHO de SCIAMACHY peut expliquer aussi les désaccords constatés avec les observations.

L'analyse de la distribution des colonnes de l'ozone montre que LMDz\_INCA reproduit bien les gradients positifs observés par l'instrument TES entre les régions équatoriales et les régions sub-tropicales. Des désaccords entre le modèle et les observations ont été trouvés dans les hautes latitudes où LMDz\_INCA sous-estime les colonnes d' $\text{O}_3$  observées, indiquant une sous-estimation des émissions anthropiques dans ces régions. Le modèle surestime les valeurs observées au moyen orient, probablement à cause de la surestimation de l'altitude de la tropopause.

L'évaluation de la performance de LMDz\_INCA a été effectuée aussi en comparant les distributions de CO, d' $\text{O}_3$  et de traceurs inertes dans le modèle aux résultats d'autres modèles globaux dans le cadre du projet AMMA-MIP (MOCAGE, TM4 et p\_TOMCAT) (Williams et al., 2010 ; Hourdin et al., 2008). Le modèle simule en général des distributions des traceurs inertes similaires à celles de TM4 et p-TOMCAT. Les différences trouvées entre ces modèles sont dues à leurs différences dans les paramétrisations de la convection et de la couche limite. Les distributions de CO et d' $\text{O}_3$  simulées par LMDz\_INCA sont plus ou moins différentes de celles simulées par ces modèles à cause de la différence de leurs schémas chimiques. Le modèle simule en effet des concentrations d' $\text{O}_3$  inférieures à celles de TM4, ce qui indique une faible production photochimique d' $\text{O}_3$  dans le modèle. Les résultats du modèle MOCAGE diffèrent de ceux de LMDz\_INCA et des autres modèles à cause de l'intensité de la convection dans ce modèle et du fait qu'il est forcé par des champs météorologiques différents issus du modèle APREGÉ-Tropiques.

Les résultats de l'évaluation globale de LMDz\_INCA, présentés dans ce chapitre, montrent qu'en général le modèle est capable de reproduire les zones de fortes émissions anthropiques (hémisphère nord), biogéniques et des feux de biomasse

(tropiques). Les désaccords constatés entre le modèle et les observations sont souvent dus à des incertitudes dans les émissions et les paramétrisations utilisées ainsi qu'aux incertitudes qui subsistent dans les mesures satellites. Les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF montrent parfois des différences (e.g. colonnes de CO, NO<sub>2</sub> et HCHO en Afrique) à cause de la différence entre les quantités et la variabilité saisonnière des émissions utilisées. Cette étude indique ainsi que les émissions peuvent influencer les résultats du modèle. Une évaluation approfondie de la distribution de plusieurs espèces chimiques en Afrique équatoriale sera présentée dans les prochains chapitres, notamment avec des comparaisons aux données in-situ de la campagne AMMA. Ainsi, l'étude au chapitre 3 permet d'analyser l'influence de la convection sur la distribution de l'ozone et de ses précurseurs en Afrique de l'Ouest. L'étude de l'influence du transport à longue distance, notamment depuis l'Afrique centrale, est présentée au chapitre 4. Le chapitre 5 présente les différentes contributions (émissions et transport) au budget régional de l'ozone en Afrique équatoriale.



# Chapitre 3

## Influence de la convection et des émissions locales.

### 3.1 Introduction

Plusieurs études basées sur des observations (Thornton et al., 1997b; Jonquières and Marengo, 1998) et des résultats de modèles (Pickering et al., 1990 ; Mari et al., 2003 ; Marécal et Rivière, 2006) ont montré que la convection profonde joue un rôle important dans la redistribution et l'injection d'espèces chimiques à partir de la basse troposphère (Lower troposphere/LT en anglais) vers la haute troposphère (Upper troposphere/UT en anglais). Les émissions à la surface et la pollution dans les basses couches peuvent être rapidement transportées vers la haute troposphère et la basse stratosphère (Lower stratosphere/LS en anglais) où elles peuvent ensuite être redistribuées horizontalement par la circulation à grande échelle qui caractérise ces niveaux de l'atmosphère (JET, branches hautes des cellules de Hadley).

Sous l'influence de la convection, des masses d'air de compositions chimiques différentes sont mélangées et redistribuées ce qui peut conduire à des changements importants dans la composition chimique de la troposphère et par conséquent sur le budget global de l'ozone. L'influence de la convection se manifeste aussi dans la production de  $\text{NO}_x$  par les éclairs (LiNO<sub>x</sub>) (DeCaria et al., 2005 ; Labrador et al., 2005). Les LiNO<sub>x</sub> sont l'une des sources importantes de  $\text{NO}_x$  dans l'atmosphère (Galloway et al., 2004) et contribuent significativement aux concentrations des  $\text{NO}_x$  dans la haute troposphère (Zhang et al., 2000b). Le transport de  $\text{NO}_x$  à partir de la stratosphère et les émissions des avions sont aussi des sources importantes de  $\text{NO}_x$  dans l'UT (Brasseur et al., 1996 ; Penner et al., 1998) notamment dans les moyennes latitudes. L'importance des  $\text{NO}_x$ , et par conséquent des LiNO<sub>x</sub>, pour la chimie de la troposphère est considérable étant donné qu'ils peuvent affecter directement la chimie de l'ozone et des  $\text{HO}_x$  (Jaeglé et al., 2001 ; Labrador et al., 2005). Stockwell et al. (1999a) ont montré que les LiNO<sub>x</sub> induisent une augmentation des concentrations de  $\text{NO}_x$ ,  $\text{HNO}_3$  et  $\text{O}_3$  respectivement de 50 pptv, 200 pptv et 20 ppbv dans la haute troposphère.

La convection dans les régions tropicales est particulièrement intéressante à cause de l'intense activité des systèmes convectifs qui s'y développent d'une part et de



l'influence des émissions dans ces régions sur l'ozone et sur la composition chimique de la stratosphère d'autre part (Holton et al., 1995). Les régions tropicales sont caractérisées aussi par une intense activité des éclairs. Plusieurs études ont montré que la fréquence des éclairs dans les tropiques représente environ 3/4 de l'activité globale des éclairs (76-85% selon Bond et al., 2002 ; 78% selon Christian et al., 2003). La communauté scientifique s'intéresse de plus en plus à la convection tropicale si bien que plusieurs campagnes d'observations ont eu lieu ces dernières années dans ces régions. Plusieurs campagnes ont eu lieu au Brésil dans le cadre des projets HIBISCUS (Impact of Tropical Convection on the Upper Troposphere and Lower Stratosphere at Global Scale), TroCCiNOx (Tropical Convection, Cirrus and Nitrogen Oxides), TroCCiBras (Tropical Convection and Cirrus experiment Brasil), TROPOZ II (Tropospheric Ozone) et TRACE-A (Transport and Atmospheric Ozone) (Nganga et al., 1996 ; Jonquière et Marenco, 1998 ; Mari et al., 2000; Fishman et al., 1996 ; Huntrieser et al., 2007). Les résultats d'études de ces campagnes ont montré des changements importants dans la composition chimique de l'atmosphère sous l'influence de la convection. Au cours de la campagne TRACE-A (Fishman et al., 1996), qui a eu lieu entre l'Afrique et l'Amérique du Sud en 1992, des concentrations de plus de 170 ppbv et 300 pptv respectivement de CO et HCHO ont été observées entre 7km et 12km. Des concentrations de plus de 110 ppbv de CO ont été observées durant la campagne TROPOZ-II (Jonquière et Marenco, 1998) dans l'UT au dessus de 7km d'altitude. D'importantes concentrations de CH<sub>4</sub>, de radon et d'humidité relative ont également été mesurées dans l'UT pendant cette campagne.

Un des principaux objectifs scientifiques de la campagne AMMA est d'étudier l'impact de la convection en Afrique de l'Ouest sur la composition chimique de cette région. L'objectif de ce chapitre est d'analyser les données collectées pendant la campagne AMMA et les résultats de LMDz\_INCA afin de comprendre l'influence du transport convectif, des LiNOx et des différentes émissions de précurseurs d'O<sub>3</sub> en Afrique de l'Ouest sur la composition chimique de cette région.

### **3.2 La convection en Afrique de l'Ouest**

L'analyse de l'activité convective en Afrique de l'Ouest peut s'effectuer à l'aide des données du satellite NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration). Ce satellite effectue en effet des mesures de radiations de grandes longueurs d'ondes émises par la terre (Outgoing Longwave Radiation/OLR en anglais; Liebmann and Smith, 1996). Sachant que ces radiations peuvent être affectées par les nuages, les données OLR peuvent être utilisées pour estimer l'intensité de la convection. Plus les valeurs observées sont faibles plus la convection est profonde (Sultan and Janicot, 2003).

La figure 3.1 montre la variabilité saisonnière et latitudinale des données OLR en 2006 moyennées entre 10°W et 10°E. L'activité convective pendant la saison sèche en hiver boréale (novembre-février) est faible en Afrique de l'Ouest (5°N-20°N). La convection commence à s'intensifier à la fin du mois d'avril au niveau des côtes Guinéennes et montre une propagation vers le nord jusqu'au mois d'août. La période à la fin du mois de juin et au début de juillet est marquée par une réduction significative de l'activité convective sur toute l'Afrique de l'Ouest. S'ensuit ensuite un saut brut de

### 3.2 La convection en Afrique de l'Ouest.

l'activité convective vers la région du Sahel au nord de 10°N jusqu'au début d'octobre où elle commence à faiblir et à se propager vers le sud en direction de l'équateur.

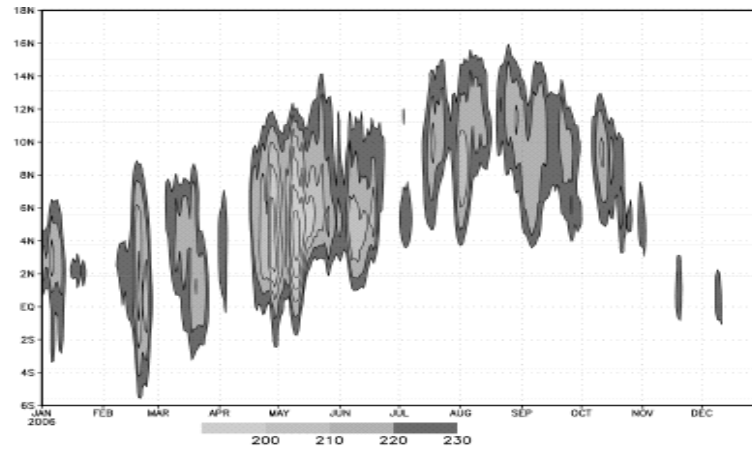


FIG. 3.1 - Variabilité saisonnière et latitudinale des données OLR ( $\text{W/m}^2$ ) en 2006 moyennées entre 10°W et 10°E (Janicot et al., 2008).

La figure 3.2 montre la variabilité saisonnière et latitudinale de la vapeur d'eau précipitable (Precipitable Water Vapor/PWV en anglais) calculée à partir des analyses du CEPMMT (Centre European pour les Prévisions Météorologiques à Moyen Terme) pour l'année 2006 et moyennées entre 10°W et 10°E. Les précipitations pendant l'hiver boréal sont localisées principalement dans l'hémisphère Sud et en Afrique centrale. La saison de la mousson entre mai et septembre est caractérisée par une advection progressive de l'air humide à partir du Golfe de Guinée vers le Sahel. Il y a une corrélation significative entre la variabilité des données PWV, des données OLR (figure 3.1) et de la position du FIT (figure 1.1). L'activité convective en Afrique de l'Ouest est en effet liée au système de mousson (Janicot et al., 2008).

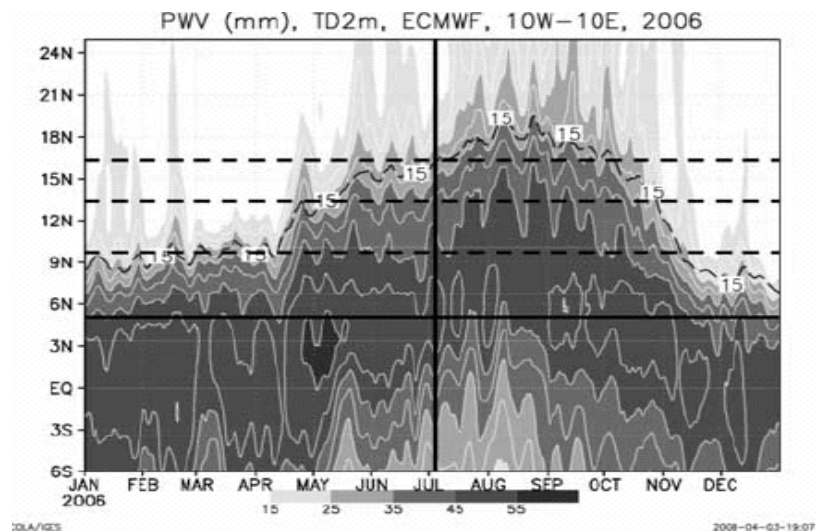


FIG. 3.2 - Variabilité saisonnière et latitudinale des données PWV (mm) à partir des analyses du CEPMMT moyennées entre 10°W et 10°E en 2006 (Bock et al., 2008).

Plusieurs systèmes convectifs méso-échelle (Mesoscale Convective Systems/MCS en anglais) se développent en Afrique pendant la saison de la mousson. Un MCS peut être défini comme étant une colonne nuageuse ou un ensemble de nuages ayant une extension verticale assez bien développée. La Figure 3.3 montre des images infrarouges MSG (Meteosat Second Generation, en anglais) du satellite METEOSAT pour le 15 juin (a), 25 juillet (b), 11 août (c) et 25 septembre (d) 2006. Les pixels en couleurs représentent la température de brillance au sommet des nuages et indiquent la distribution géographique de l'activité convective en Afrique. Ces images sont choisies pour illustrer la variabilité latitudinale de l'activité convective entre le début et la fin de la saison de la mousson. L'activité convective le 15 juin, au début de la saison de la mousson, est intense au niveau des côtes Guinéennes et de l'Afrique centrale. Le 25 juillet et le 11 août, des journées en pleine saison de la mousson, la convection est particulièrement intense au niveau du Sahel. L'activité convective le 25 septembre, à la fin de la saison de la mousson, montre une intensification au niveau des côtes Guinéennes.

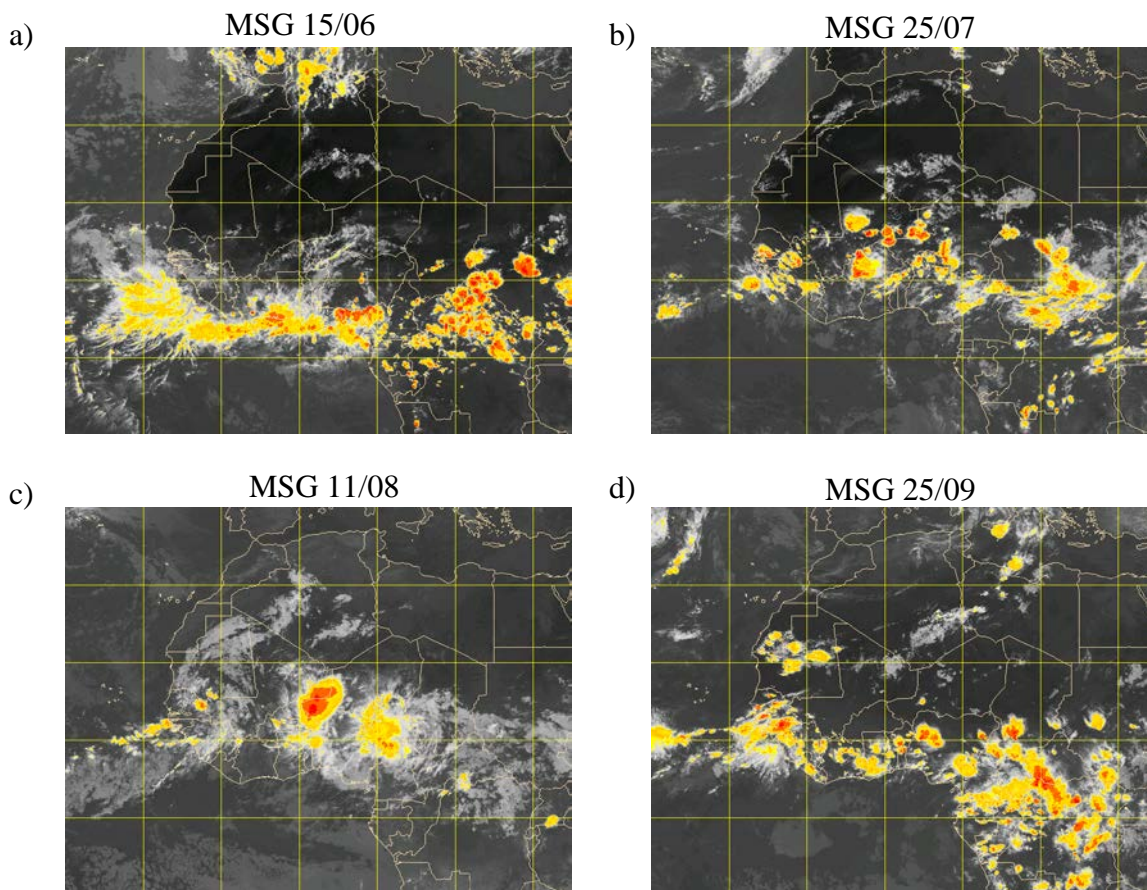


FIG. 3.3 - Images Infrarouges du satellite METEOSAT le 15 juin (a), 25 juillet (b), le 11 août et le 25 septembre (d). Les pixels en couleur jaune-orange représentent la température de brillance au sommet des nuages et indiquent l'activité convective.

### 3.3 Influence de la convection sur la composition chimique de la troposphère.

Il existe plusieurs types de MCS en Afrique qui dépendent des conditions de surface, de la latitude, de la topographie et des conditions atmosphériques en général (Tomasini et al., 2006). L'extension horizontale d'un MCS peut atteindre une surface de 100x100 km<sup>2</sup>. Les MCS les plus développés en largeur et en longueur, estimés à 12%, sont responsables de 83% des précipitations au Sahel (Mathon et al., 2002b). Environ 90% de ces MCS se propagent vers l'Ouest avec une vitesse qui peut dépasser 10 m/s. Une corrélation entre la vitesse de l'AEJ et celle des MCS a été démontrée par Mathon and Laurent (2001).

### 3.3 Influence de la convection sur la composition chimique de la troposphère

Dans cette partie seront présentés quelques exemples pour illustrer l'effet de la convection sur la distribution de quelques espèces chimiques (CO, O<sub>3</sub>, HCHO, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) dans la troposphère. L'étude est basée principalement sur les données collectées à bord des avions dédiés à l'étude des MCS pendant la campagne AMMA en été 2006 et sur les simulations de LMDz\_INCA.

#### 3.3.1 Les vols dédiés à l'étude du transport convectif pendant AMMA

Plusieurs vols d'avions ont été effectués pendant la campagne AMMA pour étudier la composition chimique des masses d'air influencées par les systèmes convectifs (vols MCS). Des mesures de plusieurs espèces chimiques (e.g. CO, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub>, HCHO, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, isoprène...etc) ont été effectuées afin de comprendre les conséquences du transport convectif sur la composition chimique de l'atmosphère en Afrique de l'Ouest. Certaines mesures ont été effectuées directement tout près des MCS afin de détecter d'éventuelles signatures du transport vertical direct de polluants à partir des basses couches vers la haute troposphère. D'autres mesures ont été effectuées avant ou après le passage d'un MCS afin de caractériser l'évolution de la composition chimique des masses d'air dans la haute troposphère. Le tableau 3.1 résume les dates des principaux vols des avions D\_F20, M55, F\_F20 et BAE\_146, dédiés à l'étude du transport convectif ainsi que les régions où les MCS ont été observés.

Date	D_F20	M55	F_F20	B_146
31/07				Nord-Ouest du Niger
03/08				Sud-Ouest du Niger
06/08	Ouest du Niger			
07/08	Est du Mali	Est du Mali		
11/08	Burkina.- Mali	Burkina. - Mali	Burkina. - Mali	
14/08			Niger - Burkina.	
15/08	Burkina.– Bénin		Nord du Bénin	Nord de Ghana
17/08			Nord-Ouest Niger	

TAB. 3.1 – Dates des vols MCS effectués par le D\_F20, M55, F\_F20 et B\_146 pendant la campagne d'observation spéciale AMMA SOP2 en 2006 et localisations des MCS observés.

Les données présentées dans ce chapitre comportent à la fois les données collectées pendant les vols MCS mais aussi certaines données collectées pendant d'autres vols non dédiés à l'étude des MCS. L'influence de la convection sur la composition d'une masse d'air peut se manifester en effet après plusieurs jours loin de la région où le MCS a été observé. Aussi, la composition d'une masse d'air peut changer au cours de son évolution dans le temps et dans l'espace, notamment si elle entre en contact avec d'autres masses d'air ayant des caractéristiques chimiques différentes ou simplement à cause de la durée de vie de certaines espèces chimiques. Il convient donc de prendre en considération dans l'étude du transport convectif les données mesurées dans les masses d'air influencées par la convection plusieurs heures ou jours avant les mesures. Des rétro-trajectoires de masses d'air ont été calculées dans le cadre du projet AMMA et, avec l'analyse des images METEOSAT, ont permis de déterminer les masses d'air influencées par la convection. Cette étude a été effectuée sur les données du D\_F20 et du M55. Les données des parties des vols de ces deux avions influencées par la convection sont considérées dans l'étude présentée dans cette section.

#### **3.3.2 Evidence de l'influence de la convection pendant la campagne AMMA**

Les données collectées pendant la campagne AMMA montrent plusieurs cas où l'influence de la convection sur les concentrations de certaines espèces, comme le CO, HCHO, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub>, dans la haute troposphère est évidente. Cette section propose d'analyser les données de certains vols MCS qui montrent une signature significative de l'influence de la convection et les données collectées au niveau d'une région par plusieurs avions à la fois. Un autre objectif de cette section est d'évaluer les simulations de LMDz-INCA.

Bien que les données de CO du D\_F20 ne montrent pas de grandes variabilités dans la haute troposphère en général, néanmoins pendant certains vols des pics ont été observés et les concentrations mesurées atteignent parfois 140 ppbv. Ces vols ont été effectués tout près des MCS et l'influence de la convection peut donc être responsable de ces fortes concentrations. Un exemple de vol MCS effectué par le D\_F20 est le vol du 6 août 2006. Comme le montre la figure 3.4a, le MCS étudié est localisé aux frontières du Niger et du Burkina-Faso. Il s'est développé le 5 août sur la partie Ouest du Niger. La trajectoire de vol de l'avion montre que les mesures ont été effectuées devant, au dessus et derrière le MCS.

La figure 3.4b représente les données de CO mesurées le long de ce vol. Des pics pas très élevés (environ 120 ppbv) et des minimums de CO ont été observés à environ 200hPa. La comparaison de la localisation de l'avion et celle du MCS a montré que les pics de CO ont été observés dans la partie de vol effectuée au dessus du MCS. Les minimums de CO ont été observés dans la zone de détrainement du nuage convectif. Ces augmentations et diminutions de CO dans la haute troposphère sont une signature de l'influence de la convection. Néanmoins, la moyenne des concentrations de CO observées le long du vol restent modérées et avoisinent 100 ppbv. L'origine et la trajectoire du MCS indiquent que les masses d'air transportées viennent du Sahel. Cela peut expliquer les valeurs modérées de CO observées car, en effet, les émissions de CO dans les régions du Sahel sont moins importantes que celles des régions proches des côtes Guinéennes où la pollution urbaine est considérable.

### 3.3 Influence de la convection sur la composition chimique de la troposphère.

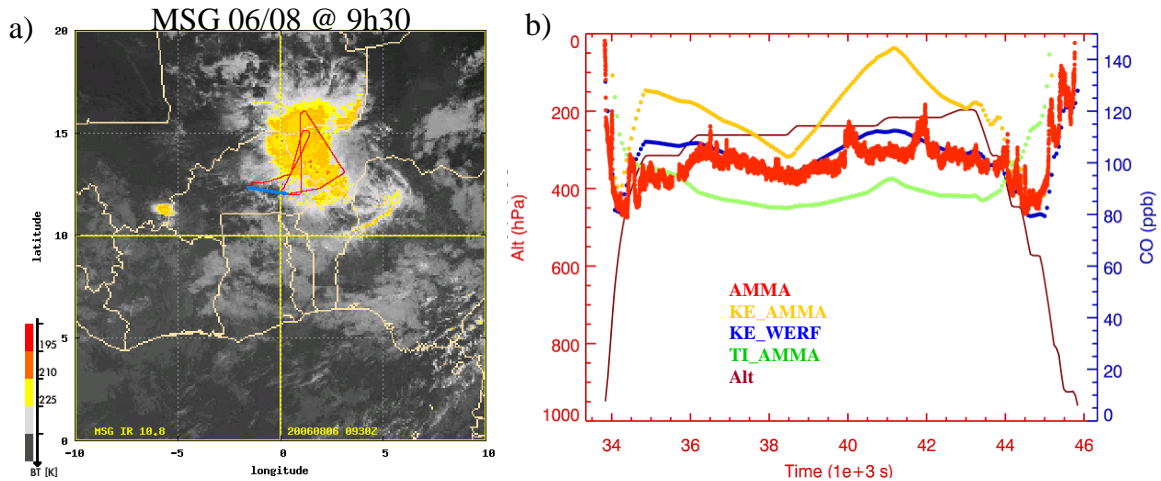


FIG. 3.4 - Image MSG le 06/08/2006 à 9h30 TU (a). Trajectoire de vol du D\_F20 (en rouge). Données de CO (ppbv) observées (en rouge) le long du vol du D\_F20 et simulées par KE\_WERF (bleu), TI\_AMMA (vert) et KE\_AMMA (orange) (b). Altitude (Alt en hPa) versus temps (Time, en  $10^3$  s).

Sur la figure 3.4b sont représentés également les résultats des simulations de LMDz-INCA (KE\_WERF, TI\_AMMA & KE\_AMMA). La simulation KE\_WERF reproduit mieux les concentrations de CO observées dans la haute troposphère. Alors que la simulation TI\_AMMA sous-estime d'environ 20 ppbv les valeurs observées dans la haute troposphère, la simulation KE\_AMMA les surestime d'environ 20 à 40 ppbv. La différence du schéma de convection explique les différences entre ces deux simulations. C'est la différence dans les émissions à la surface utilisées qui peut expliquer les différences entre KE\_AMMA et KE\_WERF. Les simulations ne reproduisent pas exactement les pics de CO observés mais simulent une augmentation des concentrations dans les mêmes régions et aux moments où les pics ont été observés. Par ailleurs, les simulations reproduisent le minimum de CO observé dans la zone de détrainement du nuage convectif. Les pluies convectives simulées par KE\_AMMA (figure 3.5) montrent que de fortes précipitations sont simulées sur le Niger et le Burkina-Faso indiquant la simulation de la convection sur ces régions le jour du vol. Le transport convectif des émissions locales depuis la basse troposphère peut expliquer ainsi les augmentations de CO simulées dans la haute troposphère.

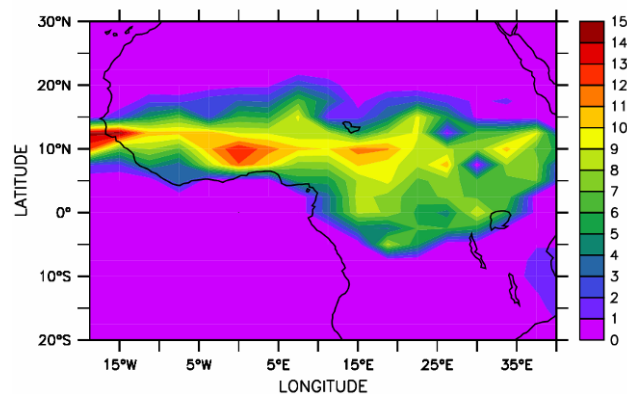


FIG. 3.5 - Pluies convectives cumulées (mm/jour) le 06/08 simulées par KE\_AMMA.



Un deuxième exemple pour illustrer l'évidence de l'influence de la convection pendant la campagne AMMA concerne les vols effectués le 15 août 2006 par le D-F20, le F\_F20 et le B\_146. Les images MSG (figure 3.6) montrent la situation météorologique en Afrique de l'Ouest le 15 août 2006 à 8h (a) et à 15h (b) en temps universel (UT). Les trajectoires des avions indiquent que les vols ont eu lieu principalement au nord du Bénin, du Togo et du Ghana. Le B\_146 a effectué son vol tôt le matin entre 4h et 9h UT. Les vols du F\_F20 et du D\_F20 ont été effectués l'après midi entre 12h et 17h UT.

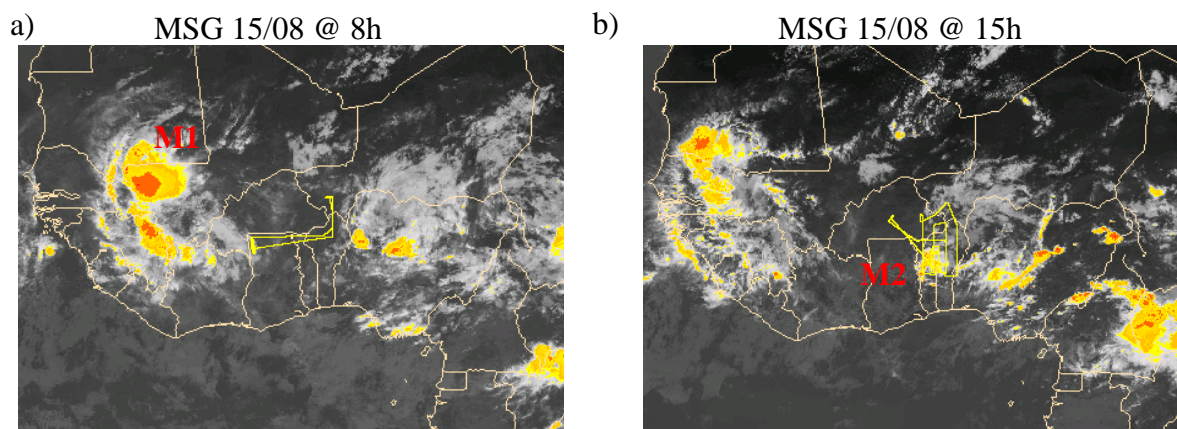


FIG. 3.6 - Images MSG le 15 août 2006 à 8h (a) et à 15h (b) UT. Les traces en couleur jaune représentent les trajectoires du B\_146 (a) et du D\_F20 et F\_F20 (b). M1 et M2 sont les MCS étudiés.

Aucun MCS n'a été observé dans la région de vol du B\_146 le matin du 15 août 2006. Ce vol a été effectué en effet pour étudier l'influence d'un MCS qui est déjà passé par cette région le 14 août après midi environ 12h avant le vol du B\_146. Ce MCS, visible sur la figure 3.6a (M1), est resté actif le 15 août au Sud-Ouest du Mali. Les vols du D\_F20 et du F\_F20 ont été effectués pour étudier un petit MCS (M2) visible au nord du Bénin et du Togo (figure 3.6b). Ce MCS, dont l'activité a diminué, s'est formé le 14 août au Tchad. La figure 3.7 représente les données de CO mesurées le long des vols du D\_F20 et du F\_F20. Les concentrations observées atteignent respectivement 140 ppbv et 200 ppbv aux environs de 200hPa. Ces valeurs sont supérieures aux 100 ppbv qui correspondent aux concentrations de CO dans une troposphère non polluée (Sauvage et al., 2007a). L'analyse des trajectoires des deux avions et de la localisation du MCS a montré que les concentrations élevées de CO ont été observées plutôt derrière le MCS dans la partie enclume du nuage convectif (Ancellet et al., 2009). Le transport convectif de masses d'air locales polluées depuis les basses couches est l'explication la plus probable aux concentrations élevées de CO observées. Les régions survolées par le MCS au Nigeria et au Bénin sont caractérisées en effet par d'importantes quantités d'émissions de CO anthropiques et biogéniques.

Les simulations KE\_AMMA et TI\_AMMA reproduisent correctement les concentrations de CO observées par le D\_F20. La simulation KE\_WERF sous-estime de 20-30 ppbv les valeurs observées dans la haute troposphère. Les concentrations

### 3.3 Influence de la convection sur la composition chimique de la troposphère.

élevées de CO (près de 200ppbv) mesurées par le F\_F20 sont cependant sous-estimées de plus de 50 ppbv par toutes les simulations.

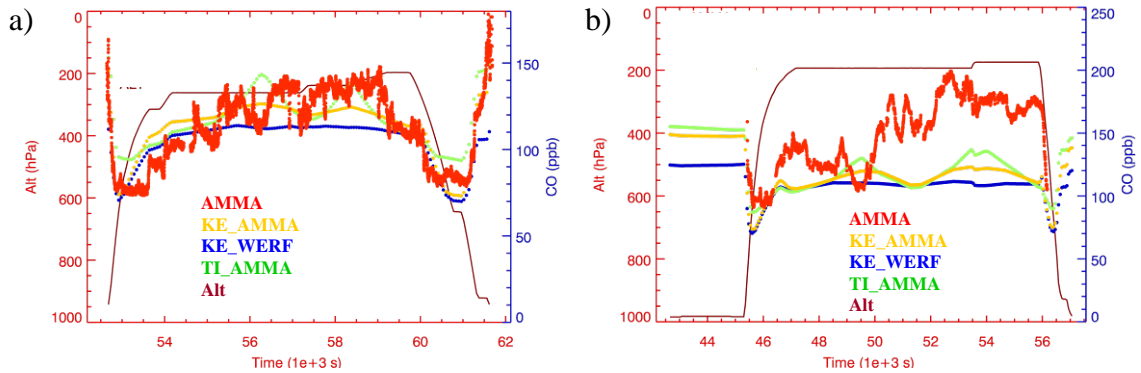


FIG. 3.7 - Données de CO (en rouge) (en ppbv) observées le long du vol du D\_F20 (a) et du F\_F20 (b) le 15 août 2006 ; Simulations du modèle (KE\_WERF, TI\_AMMA, KE\_AMMA).

Le D\_F20 et le F\_F20 ont mesuré aussi le HCHO et le H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> respectivement pendant leurs vols du 15 août (figure 3.8). Les concentrations de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> mesurées dépassent 0.5 ppbv et un pic de 1.4 ppbv a été observé dans la haute troposphère. Ancellet et al. (2009) ont montré que l'origine, l'âge et l'évolution du MCS M2 influencent les concentrations de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> dans la haute troposphère. Leur étude a montré notamment que la formation de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> augmente avec l'âge du MCS. Le transport convectif de masses d'air depuis les basses couches humides ainsi que l'évolution de leur composition chimique peut en effet induire une production de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. Les simulations du modèle, notamment KE\_WERF, surestiment les concentrations de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> dans la haute troposphère. Les faibles concentrations de NO<sub>x</sub> simulées (voir figure 3.16, prochaine section) indiquent que dans le modèle le HO<sub>2</sub> réagit plutôt avec lui même pour former le H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> qu'avec le NO. Une autre explication possible de ce biais avec les observations est que le lessivage est probablement faible dans le modèle ce qui peut entraîner une surestimation des concentrations de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>.

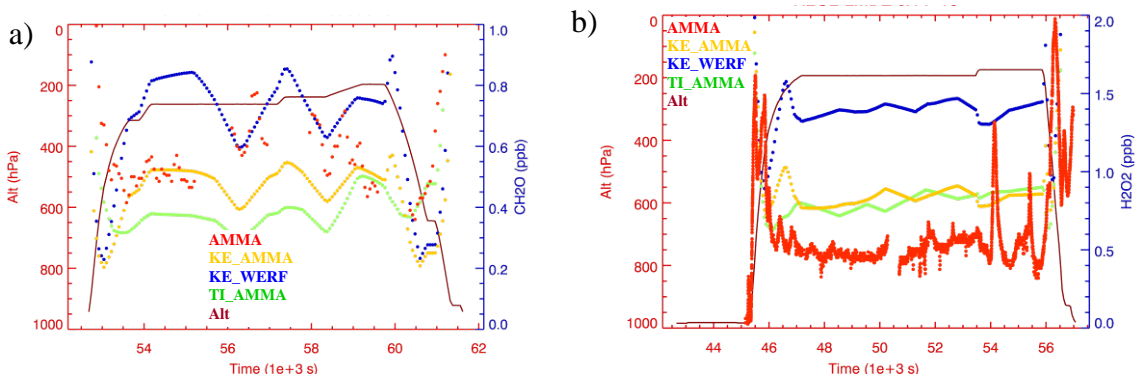


FIG. 3.8 - Données de HCHO (a) et H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (b) (en ppbv) observées (en rouge) respectivement le long du vol du D\_F20 et du F\_F20 le 15 août 2006. Simulations du KE\_WERF (bleu), TI\_AMMA (vert) et KE\_AMMA (orange).



Les concentrations de HCHO observées par le D\_F20 varient considérablement le long du vol. Des pics allant jusqu'à 0.8 ppbv ont été mesurés notamment aux mêmes endroits où l'augmentation des concentrations de CO a été constatée (figure 3.7). Les cartes des flux d'émissions de HCHO à la surface, présentées au chapitre 1 (section 1.5), montrent des émissions élevées en Afrique de l'Ouest notamment dans les régions proches des côtes Guinéennes où les émissions biogéniques sont importantes. Le transport convectif de ces émissions depuis la basse troposphère peut donc expliquer ces concentrations élevées de HCHO.

Les simulations du modèle reproduisent en général la variabilité des concentrations de HCHO mesurées le long du vol du D\_F20. Les simulations KE\_AMMA et TI\_AMMA sous-estiment cependant d'environ 0.2 ppbv et 0.4 ppbv respectivement les concentrations élevées de HCHO observées dans la haute troposphère. La simulation KE\_WERF reproduit mieux les maximums observés. La figure 3.9 représente les concentrations de HCHO simulées par KE\_AMMA et KE\_WERF à 237hPa moyennées en août 2006. KE\_WERF simule plus de HCHO dans la haute troposphère en comparaison à KE\_AMMA. La comparaison des colonnes totales de HCHO simulées par KE\_AMMA et KE\_WERF et observées par SCIAMACHY au chapitre 2 (section 2.6.3) a montré aussi que c'est la simulation KE\_WERF qui reproduit mieux les observations en Afrique de l'Ouest. Cependant, les cartes d'émissions de HCHO présentées au chapitre 1 (section 1.5) montrent que les émissions de HCHO utilisées par KE\_AMMA et TI\_AMMA (émissions AMMA) sont plus fortes en comparaison à celles utilisées par KE\_WERF (cadastre d'émissions WERF). La différence constatée entre les simulations peut s'expliquer alors par une destruction chimique de HCHO plus importante dans les simulations KE\_AMMA et TI\_AMMA. La comparaison de la distribution de OH dans les simulations a montré une augmentation de plus de 30% en moyenne des concentrations de OH dans la haute troposphère dans KE\_AMMA en comparaison avec la simulation KE\_WERF. L'oxydation de HCHO par OH est donc plus importante dans la simulation KE\_AMMA et peut expliquer la sous-estimation des observations HCHO du D\_F20. Une autre explication possible concerne la différence des concentrations d'isoprène simulées notamment dans la moyenne et la haute troposphère. L'oxydation d'isoprène par le radical OH peut en effet contribuer à la formation de HCHO. Comme le montre les cartes des flux d'émissions d'isoprène présentées au chapitre 1 (sections 1.3.2 et 1.5), les émissions d'isoprène en août utilisées par KE\_WERF sont plus fortes (+50% par rapport à KE\_AMMA) en Afrique de l'Ouest. Cela peut conduire à plus de production de HCHO dans la simulation KE\_WERF.

### 3.3 Influence de la convection sur la composition chimique de la troposphère.

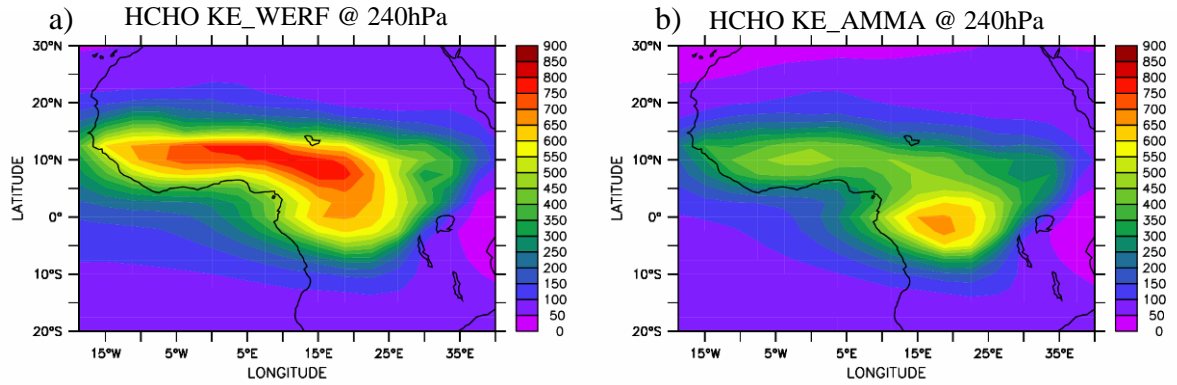


FIG. 3.9 – Concentrations moyennes de HCHO (pptv) à 240 hPa, simulées par KE\_WERF (a) et KE\_AMMA (b) pour août 2006.

Les observations du B\_146 (figure 3.10) montrent une variabilité importante des concentrations de CO et de HCHO le long du vol du 15 août 2006 où des mesures ont été effectuées à plusieurs niveaux d'altitude entre 600hPa et 300hPa. Les valeurs observées dans la moyenne troposphère sont d'environ 80 ppbv pour CO et varient entre 0.4 ppbv et 0.6 ppbv pour HCHO. Les plus fortes concentrations dépassent 100 ppbv et 1 ppbv respectivement et ont été observées dans les hautes altitudes au nord du Bénin, du Togo et du Ghana. La situation météorologique ne montre aucune activité convective sur cette région le matin du 15 août. Le MCS M1, au cours de son passage par cette région le 14 août, quelques heures avant le vol du B\_146, aurait probablement transporté des masses d'air polluées dans la haute troposphère. Cela peut donc expliquer les augmentations des concentrations observées.

Les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF reproduisent en général correctement les concentrations de CO observées. TI\_AMMA les surestime d'environ 20 ppbv notamment dans la moyenne troposphère. Les simulations reproduisent aussi en général la variabilité des concentrations de HCHO et les pics observés. Les maximums mesurés sont cependant sous-estimés d'environ 0.4 ppbv par toutes les simulations. Comme dans la comparaison avec les données du D\_F20, la simulation KE\_WERF reproduit mieux les concentrations de HCHO dans la haute troposphère.

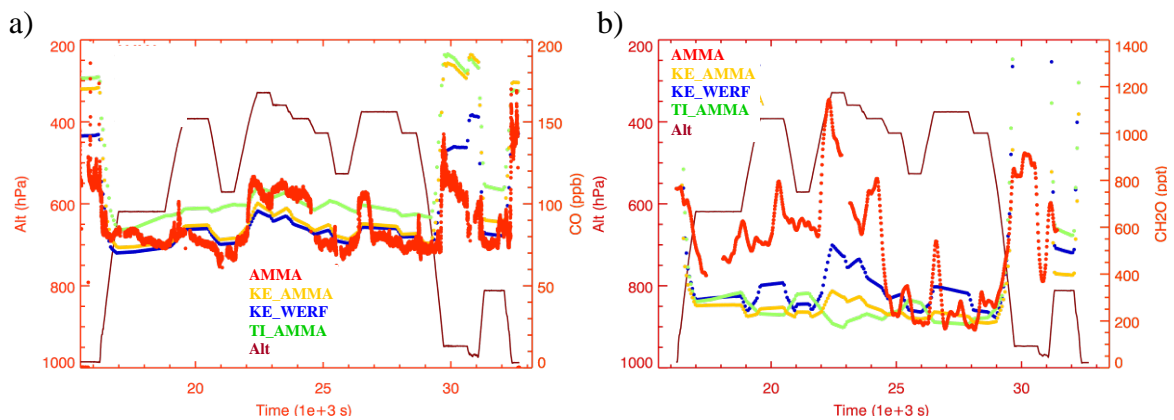


FIG. 3.10 - Données de CO (a) (ppbv) et HCHO (b) (pptv) observées au long du vol du B\_146 le 15 août 2006. Simulations du modèle (KE\_WERF, TI\_AMMA, KE\_AMMA).

Concernant les mesures d'O<sub>3</sub> effectuées par le D\_F20 et le F\_F20 (figure 3.11), les deux avions ont observé des concentrations qui dépassent 50 ppbv dans la haute troposphère. Les valeurs mesurées aux endroits où les pics de CO et H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ont été observés, montrent une réduction des concentrations d'O<sub>3</sub> à 40 ppbv environ. Les simulations ne reproduisent pas la diminution d'O<sub>3</sub> observée par le D\_F20 dans la haute troposphère mais reproduisent correctement les concentrations observées pendant les autres parties du vol. Les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF reproduisent en général correctement les concentrations d'O<sub>3</sub> observées par le F\_F20. TI\_AMMA les sous-estime d'environ 5-10 ppbv dans la haute troposphère. L'influence de la convection sur l'ozone dans la haute troposphère sera discutée plus en détail dans une prochaine section.

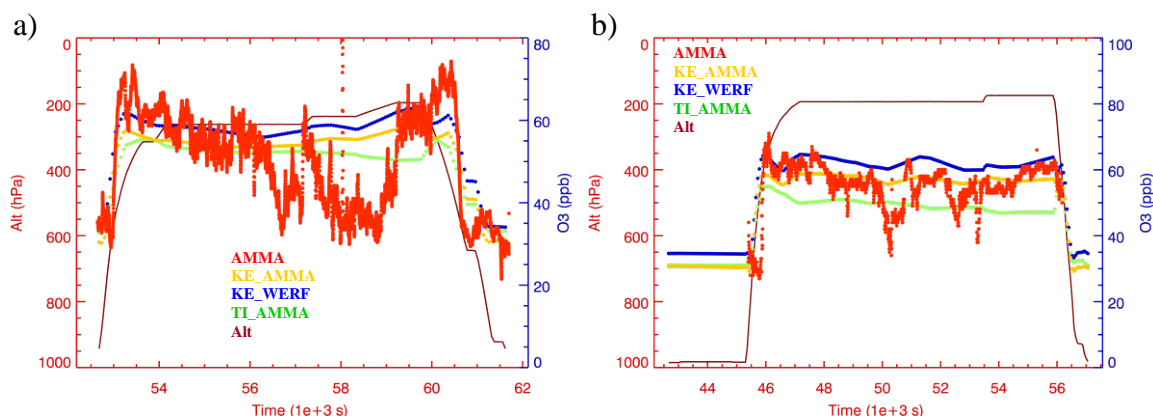


FIG. 3.11 - Données d'O<sub>3</sub> (en rouge) (ppbv) observées par le D\_F20 (a) et le F\_F20 (b) le 15 août 2006 ; Simulations du modèle (KE\_WERF, TI\_AMMA, KE\_AMMA).

Afin de mieux illustrer l'influence de la convection sur la distribution des espèces chimiques mesurées, les données des avions D\_F20, M55 et F\_F20 ont été séparées en deux catégories (Conv et No\_Conv) suivant qu'elles étaient mesurées dans des masses d'air influencées ou pas par la convection. La séparation des données des avions D\_F20 et M55 a été effectuée grâce à des rétro-trajectoires, calculées dans le cadre du programme AMMA, qui ont permis de déterminer l'origine des masses d'air au long de chaque vol (Law et al., 2010). L'analyse de ces rétro-trajectoires et des images METEOSAT a permis de voir si à un moment donné les masses d'air sont passées par des régions d'intense activité convective. Le contact probable de ces masses d'air avec un MCS où une zone de convection pourrait alors influencer leur composition chimique. Les rétro-trajectoires ont été calculées pour 3 à 4 jours avant l'heure de vol. Les données du F\_F20 ont été séparées suivant le type de vol effectué : vols dédiés ou non à l'étude des MCS. La figure 3.12 représente les profils verticaux de CO résultants de cette séparation des données ainsi que les résultats des simulations de LMDz\_INCA.

### 3.3 Influence de la convection sur la composition chimique de la troposphère.

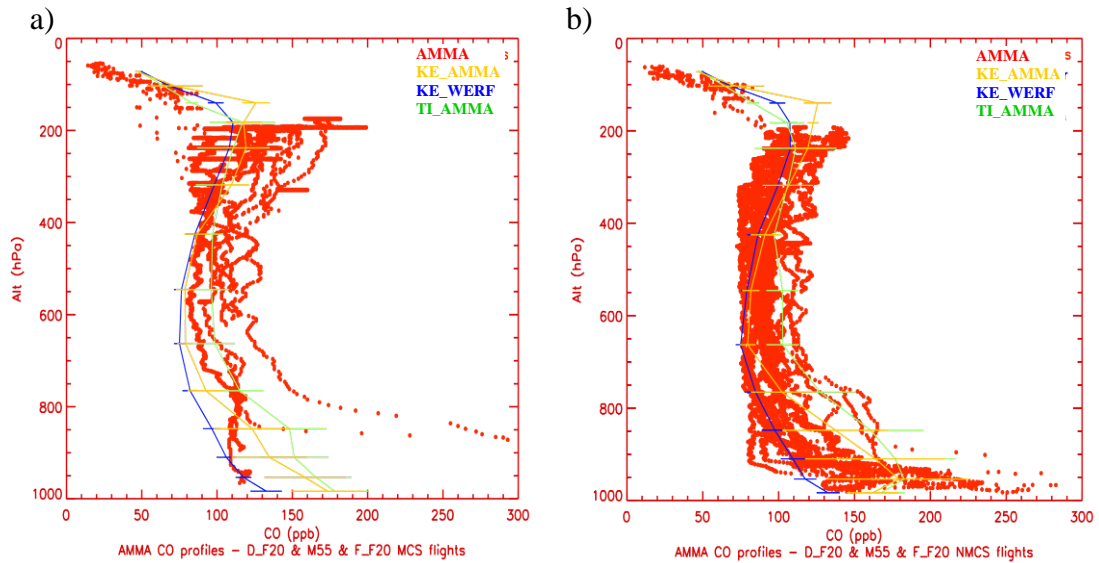


FIG. 3.12 - Profils verticaux de CO (en rouge) (ppbv) mesurés par le D\_F20, F\_F20 et M55 en août 2006; Résultats des simulations KE\_AMMA (orange), TI\_AMMA (vert) et KE\_WERF (bleu). Catégories Conv (a) et No\_Conv (b).

La distribution verticale des profils observés montre le profil type de la distribution de CO dans la troposphère (en forme d'un "C"). Des concentrations plus élevées ont été observées dans la basse et la haute troposphère. Les données de la catégorie Conv (figure 3.12-a) affichent une variabilité plus grande que celles de la catégorie No\_Conv (figure 3.12-b) notamment dans les hautes altitudes entre 400 hPa et 200 hPa. Les concentrations mesurées sont en général largement supérieures à 100 ppbv et atteignent 200 ppbv vers 200 hPa. Dans la catégorie No\_Conv, les données montrent des valeurs modérées de près de 120 ppbv dans la moyenne troposphère. Dans la haute troposphère vers 200 hPa, les concentrations atteignent par contre 150 ppbv. Les données des deux catégories montrent une décroissance des concentrations de CO à partir de 200 hPa jusqu'à la basse stratosphère. Des concentrations d'environ 80 ppbv ont été observées vers 100 hPa.

La répartition des données de CO dans les deux catégories montre des concentrations dans la haute troposphère plus élevées dans les masses d'air influencées par la convection. Cependant, les observations révèlent aussi les plus faibles concentrations dans les cas convectifs entre 300-200 hPa. Le transport convectif des émissions depuis la basse troposphère induit une augmentation des concentrations de CO dans la haute troposphère. Dans les zones de détrainement par contre, la convection induit une diminution des concentrations de CO.

Les résultats du modèle reproduisent en général assez bien la distribution verticale des concentrations de CO observées. Cependant, dans la haute troposphère, les simulations sous-estiment d'environ 50 ppbv les valeurs élevées de CO dans la catégorie Conv. La simulation KE\_AMMA reproduit mieux les concentrations observées entre 300 hPa et 150 hPa. Dans la moyenne troposphère, la simulation TI\_AMMA reproduit mieux les concentrations de CO dans les deux catégories. Le transport convectif avec le schéma de Tiedtke et al. (1989) utilisé dans la simulation TI\_AMMA semble influencer plus la moyenne troposphère que la haute troposphère.

La simulation KE\_WERF est la moins performante. Elle sous-estime les concentrations dans presque toute la colonne troposphérique notamment dans les basses couches où il y a une différence de plus de 50 ppbv de CO en comparaison aux résultats des deux autres simulations. Cette différence peut s'expliquer par l'augmentation des émissions de CO dans l'inventaire d'émissions AMMA utilisé par les simulations KE\_AMMA et TI\_AMMA. Les résultats montrent qu'il n'y a pas de grandes différences entre les profils simulés dans les deux catégories Conv et No\_Conv notamment dans la haute troposphère. En effet, le modèle simule de la convection chaque jour et par conséquent il est difficile de séparer les résultats du modèle dans les deux catégories comme pour les observations.

### 3.3.3 Analyse du transport convectif dans LMDz-INCA

Afin de mieux comprendre l'influence du transport convectif dans LMDz-INCA, une simulation (Conv\_off) de 4 mois (mai-août 2006) a été réalisée en inhibant la convection dans le modèle en Afrique (30°S-20°N, 20°W-40°E). Cette simulation est identique à la simulation KE\_AMMA (mêmes émissions et schéma de convection) mais sans le transport convectif en Afrique. La figure 3.13 montre la distribution verticale de CO dans la simulation de référence KE\_AMMA (figure 3.13a) et la différence en pourcentage avec la simulation Conv\_off (figure 3.13b). Les résultats du modèle ont été moyennés sur le mois d'août 2006 et entre 5°N et 20°N.

En présence de la convection dans le modèle, des valeurs supérieures à 100 ppbv sont simulées dans la basse et la haute troposphère. L'influence des émissions à la surface est visible avec des concentrations de plus de 150 ppbv simulées dans les basses couches. La suppression de la convection induit une réduction jusqu'à 40% des concentrations de CO dans la haute troposphère. Dans la basse et la moyenne troposphère par contre les concentrations augmentent de plus de 60% sous l'effet de l'accumulation des émissions.

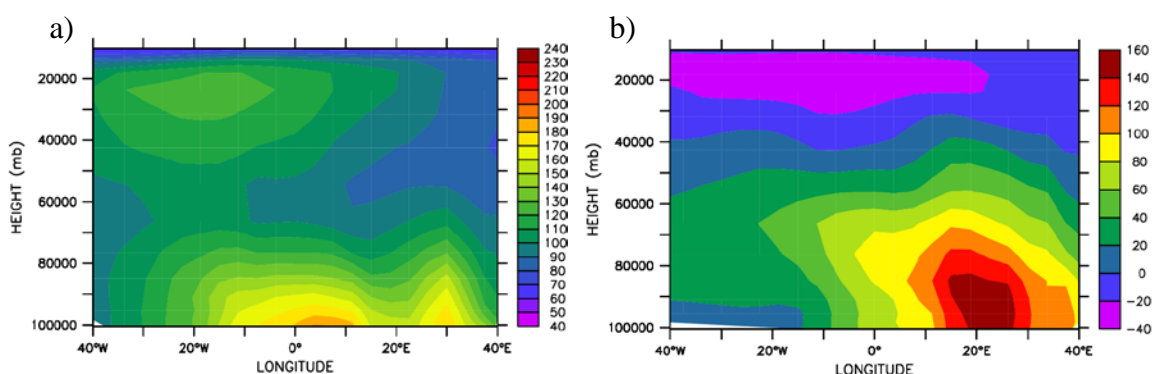


FIG. 3.13 - Distribution verticale de CO (ppbv) dans la simulation KE\_AMMA en moyenne sur août 2006 et entre 5°N et 20°N (a) ; différence en pourcentage avec la simulation sans convection (Conv\_off – KE\_AMMA/KE\_AMMA) (b).

### 3.3 Influence de la convection sur la composition chimique de la troposphère.

L'isoprène peut également être utilisé comme traceur du transport vertical convectif. En effet, à cause de sa courte durée de vie (environ 1h), la présence de concentrations d'isoprène dans la haute troposphère témoigne généralement d'un rapide transport convectif à partir de la basse troposphère. La distribution des concentrations d'isoprène simulée par le modèle (figure 3.14a) montre une augmentation des concentrations dans les hautes couches à partir de 400hPa. La simulation Conv\_off (figure 3.14b) montre une réduction presque totale des concentrations dans la haute troposphère. Comme avec le CO, les concentrations dans la moyenne et la basse troposphère ont augmenté sous l'effet de l'accumulation des émissions. La comparaison des résultats du modèle aux observations du B\_146 a montré que la simulation KE\_AMMA reproduit mieux les concentrations d'isoprène observées dans la basse et la moyenne troposphère. La simulation KE\_WERF les surestime de plus de 50% dans la basse troposphère. Cela est dû aux fortes émissions d'isoprène utilisées dans cette simulation.

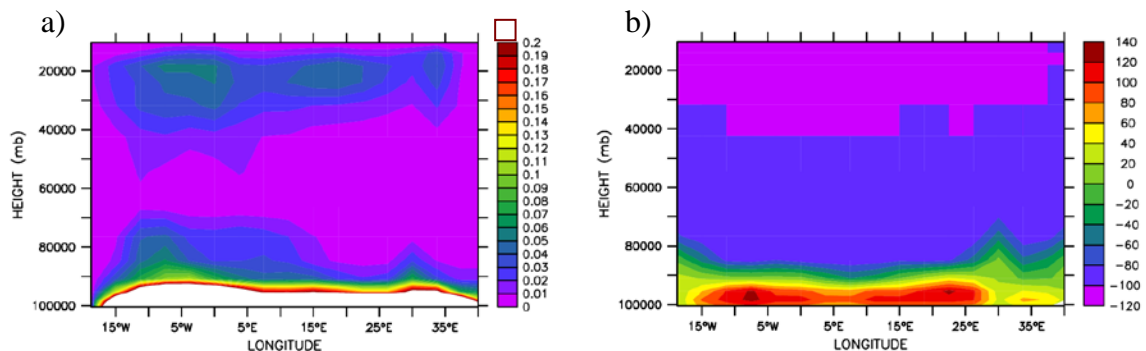


FIG 3.14 - Distribution verticale d'isoprène (ppbv) dans la simulation KE\_AMMA moyennée sur août 2006 et entre 5°N et 20°N (a) ; différence en pourcentage avec la simulation Conv\_off ( $\text{Conv\_off} - \text{KE\_AMMA} / \text{KE\_AMMA}$ ) (b). Altitude (HEIGHT) en Pa.

Les résultats d'étude de l'influence de la convection sur les concentrations de CO dans LMDz\_INCA, présentés dans cette section, sont en accord avec les résultats du modèle RAMS (Pielke et al., 1992) obtenus par Marécal et al. (2006). Ces derniers ont montré une augmentation des concentrations de CO dans RAMS à partir de 7km jusqu'à la tropopause due au transport convectif. Comme dans LMDz\_INCA, le modèle RAMS simule une réduction des concentrations de CO dans la moyenne troposphère. Les résultats d'étude de l'influence de la convection sur la distribution d'isoprène dans LMDz\_INCA sont aussi en accord avec les résultats de Doherty et al. (2005). Ces derniers ont montré en effet une augmentation des concentrations d'isoprène (jusqu'à 0.16 ppbv) dans la haute troposphère au dessus des continents dans les tropiques. Les simulations réalisées montrent ainsi que le transport convectif dans LMDz\_INCA influence considérablement la composition chimique de la troposphère en Afrique de l'Ouest. L'influence des émissions de surface sur les résultats du modèle est bien visible aussi avec les différences constatées dans les concentrations de CO et de HCHO calculées par les différentes simulations. L'effet du schéma de convection est aussi important et montre qu'avec le schéma de Kerry Emanuel le transport convectif vers la haute troposphère est plus intense.



### 3.4 Impact des NO<sub>x</sub> produits par les éclairs

Cette section propose d'analyser les performances du modèle en termes de comparaison avec les données de NO et NO<sub>y</sub> mesurées pendant la campagne AMMA. Une attention particulière sera portée aux mesures effectuées dans la haute troposphère. La figure 3.15 représente les données de NO et NO<sub>y</sub> mesurées par le D\_F20 le long du vol du 06 août 2006, décrit précédemment dans la section 3.3.2, ainsi que les résultats de LMDz\_INCA. Les données montrent une importante variabilité des concentrations mesurées dans la haute troposphère avec des maximums de 0.8ppbv et 2.8ppbv respectivement pour NO et NO<sub>y</sub>. Une production de NO<sub>x</sub> par les éclairs (LiNO<sub>x</sub>) peut expliquer ces fortes concentrations. Le transport convectif de NO<sub>x</sub> depuis la surface peut aussi contribuer à ces fortes valeurs. D'importantes émissions de NO<sub>x</sub> par les sols ont été en effet observées pendant les vols du B\_146 au niveau du Sahel (Stewart et al., 2008).

Les simulations de LMDz\_INCA montrent que le modèle sous-estime considérablement les pics de NO et NO<sub>y</sub> observés. Les maximums simulés sont d'environ 0.15 ppbv et 0.5 ppbv respectivement, des valeurs largement inférieures aux maximums mesurés.

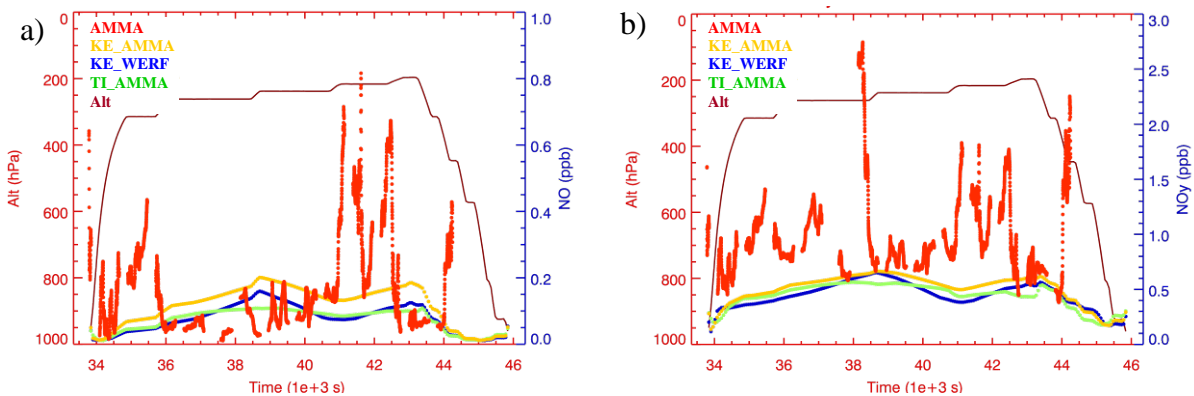


FIG. 3.15 - Données (rouge) de NO (a) et NO<sub>y</sub> (b) en ppbv observées le long du vol du 06 août 2006 par le D\_F20; Simulations du modèle (KE\_WERF, TI\_AMMA, KE\_AMMA).

Les données de NO et NO<sub>y</sub> mesurées par le D\_F20 le 15 août 2006 (figure 3.16) au dessus du MCS M2 (voir figure 3.6) montrent également une grande variabilité dans la haute troposphère. Des pics de 1 ppbv et 2 ppbv respectivement de NO et NO<sub>y</sub> ont été mesurés aux environs de 200hPa. L'influence des LiNO<sub>x</sub>, et éventuellement des émissions de NO<sub>x</sub> par les sols, peut expliquer aussi ces fortes concentrations. La comparaison avec les simulations de LMDz\_INCA montre que le modèle n'arrive pas à reproduire les pics observés.

### 3.4 Impact des NO<sub>x</sub> produits par les éclairs.

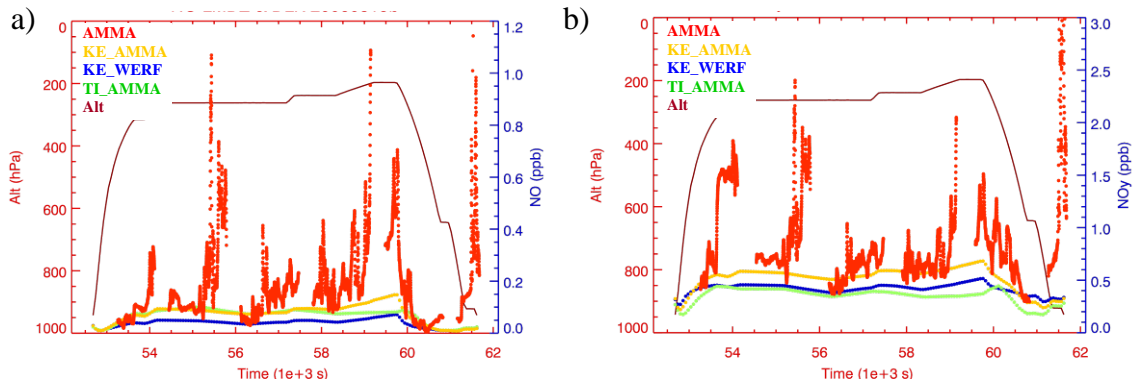


FIG 3.16 - Données (en rouge) NO (a) et NO<sub>y</sub> (b) en ppbv observées le long du vol du D\_F20 le 15 août 2006; Simulations du modèle (KE\_WERF, TI\_AMMA, KE\_AMMA).

La figure 3.17 représente les profils verticaux de NO mesurés par le D\_F20 et le M55, répartis dans les catégories Conv et No\_Conv (voir la section 3.3.2). Les données de la catégorie Conv montrent une variabilité considérable des concentrations de NO avec des maximums de 1500 pptv mesurés entre 400hPa et 150hPa. Les données de la catégorie No\_Conv affichent aussi une augmentation des concentrations à partir du niveau d'altitude 400hPa. Les maximums mesurés (près de 600 pptv) sont cependant environ deux fois inférieurs aux maximums de la catégorie Conv. Comme pour les profils verticaux de CO, les profils de NO montrent ainsi que dans la haute troposphère les concentrations de NO sont plus élevées dans les masses d'air influencées par la convection.

Les résultats du modèle montrent que les simulations reproduisent la forme des profils verticaux de NO observés avec un maximum simulé vers 200hPa. Cependant, toutes les simulations sous-estiment les concentrations de NO observées dans la haute troposphère. La simulation KE\_AMMA simule 100pptv de NO de plus que les simulations KE\_WERF et TI\_AMMA dans la haute troposphère mais les 200pptv simulés restent très en dessous des pics observés. Les résultats des simulations montrent ainsi que les LiNO<sub>x</sub> sont sous-estimés dans LMDz\_INCA.



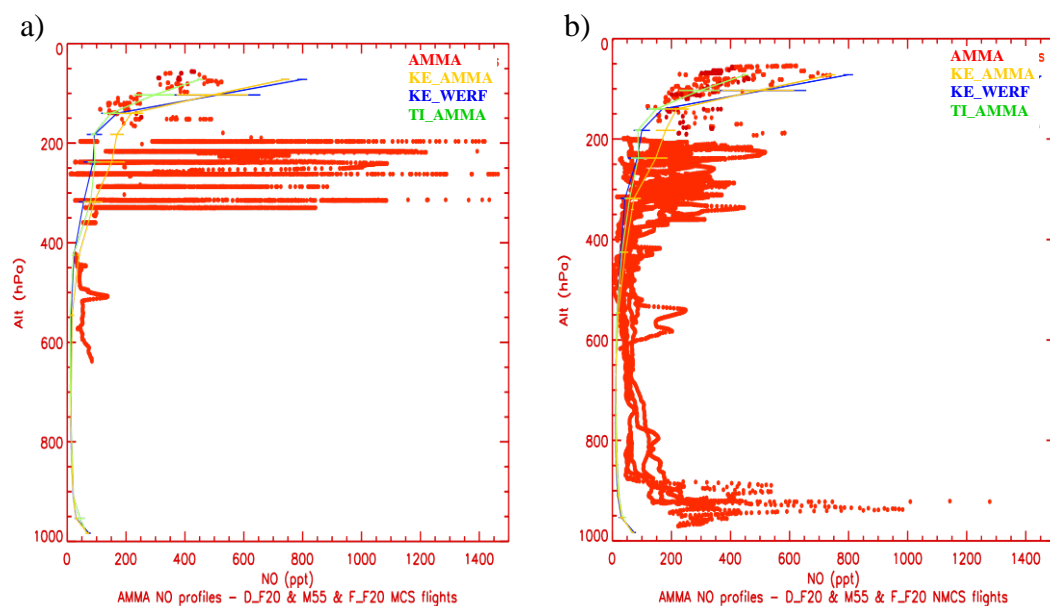


FIG. 3.17 - Profils verticaux de NO (en rouge) en pptv dans les catégories Conv (a) et No\_Conv (b); Profils simulés par le modèle (KE\_WERF, TI\_AMMA, KE\_AMMA).

### 3.4.1 Influence des LiNO<sub>x</sub> dans LMDz\_INCA

Afin de mieux comprendre l'impact des LiNO<sub>x</sub> sur les résultats de LMDz\_INCA, une simulation sans LiNO<sub>x</sub> a été réalisée (LiNO<sub>x</sub>\_off). Dans cette simulation, seule la production de LiNO<sub>x</sub> a été inhibée. La figure 3.18-a présente la distribution des NO<sub>x</sub> dans le modèle en moyenne sur août 2006 et entre 5°N et 20°N. La distribution verticale des concentrations a la forme du "C" habituel de la distribution de NO<sub>x</sub> dans la troposphère avec de fortes concentrations dans les basses et les hautes altitudes. La figure 3.18-b présente la différence en pourcentage entre la simulation de référence (KE\_AMMA) et la simulation LiNO<sub>x</sub>\_off. La suppression des LiNO<sub>x</sub> dans le modèle a induit une réduction des concentrations de NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère qui dépasse 80% entre 400hPa et 200hPa. La moyenne troposphère est également affectée par une réduction importante de 20% à 60% des concentrations de NO<sub>x</sub>.

L'effet du transport convectif n'est pas seulement le transport de masses d'air depuis les basses couches vers la haute troposphère mais également un mélange inverse qui conduit à la subsidence de masses d'air vers la moyenne et la basse troposphère. La suppression des LiNO<sub>x</sub> et la présence de la convection dans cette simulation expliquent ainsi la réduction des concentrations de NO<sub>x</sub> dans la moyenne troposphère. Cela peut expliquer également la réduction de 10-20% de NO<sub>x</sub> simulée dans les basses couches de la troposphère.

### 3.4 Impact des NO<sub>x</sub> produits par les éclairs.

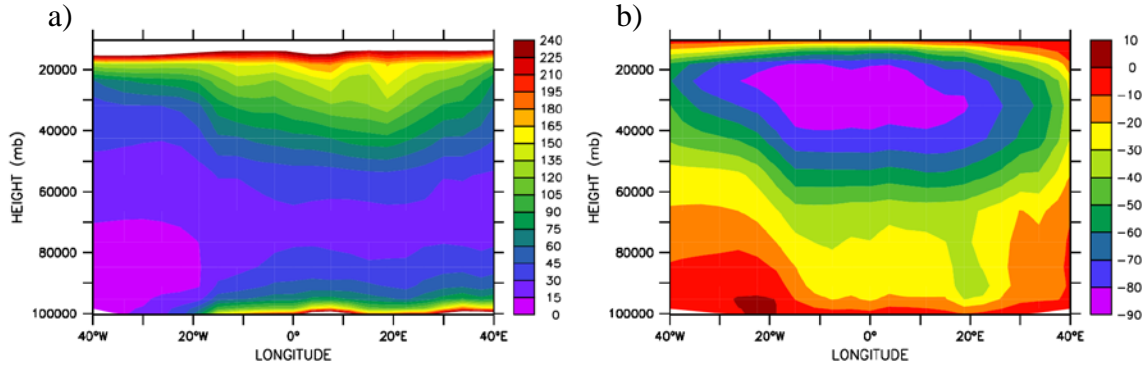


FIG. 3.18 - Distribution verticale de NO<sub>x</sub> (pptv) dans la simulation KE\_AMMA en moyenne sur août 2006 et entre 5°N et 20°N (a) ; différence en pourcentage entre KE\_AMMA et LiNOx\_off (LiNOx\_off – KE\_AMMA/KE\_AMMA) (b).

La simulation LiNOx\_off a montré que dans le modèle, les LiNOx influencent la distribution de plusieurs autres espèces chimiques comme HNO<sub>3</sub>, OH et CO qui jouent un rôle important dans la chimie troposphérique. Le HNO<sub>3</sub> est en effet produit par la réaction de NO<sub>x</sub> avec OH. Les LiNOx induisent une augmentation de NO<sub>x</sub> ce qui explique l'augmentation de plus de 60% de HNO<sub>3</sub> dans la haute troposphère (figure 3.19). Les LiNOx induisent également une augmentation de plus de 60% des concentrations de OH entre 400hPa et 200hPa. Cette augmentation de OH induit une réduction de CO, ce qui explique les 5-7 % de diminution des concentrations de CO dans la haute troposphère (figure 3.20). Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par Stockwell et al. (1999b) avec le modèle global TOMCAT (Chipperfield and Simon, 1996). Leurs résultats montrent que les LiNOx induisent une augmentation de 100% et de 50% respectivement de HNO<sub>3</sub> et de OH, et une diminution de 10% de CO dans la haute troposphère des régions tropicales.

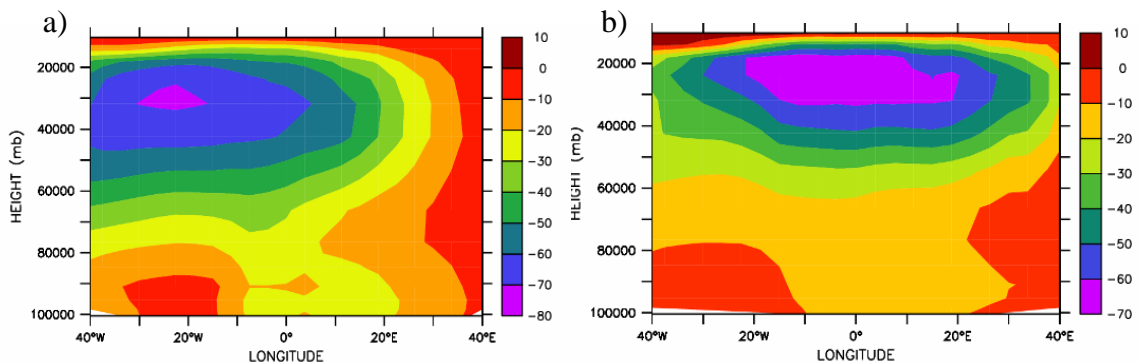


FIG. 3.19 – Différence en pourcentage entre les concentrations de HNO<sub>3</sub> (a) et OH (b) simulées par LiNOx\_off et par KE\_AMMA (LiNOx\_off – KE\_AMMA/KE\_AMMA); moyenne en août 2006 et entre 5°N et 20°N.

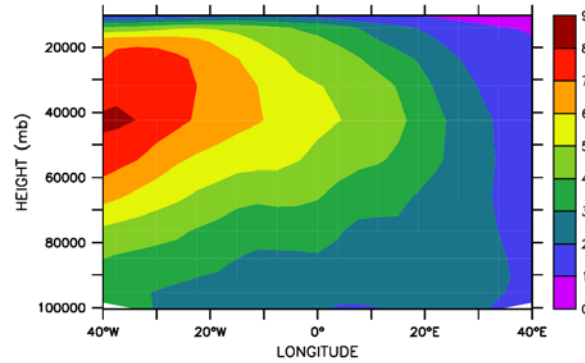


FIG. 3.20 – Différence en pourcentage des concentrations de CO simulées par LiNOx\_off et KE\_AMMA ; moyenne en août 2006 et entre 5°N et 20°N.

Les résultats de LMDz\_INCA montrent que les LiNOx sont sous-estimés dans le modèle notamment dans la haute troposphère. Afin d'essayer de reproduire les valeurs élevées de NO<sub>x</sub> observées pendant AMMA, un test de sensibilité 'LiNOx2' a été réalisé en augmentant de 50% les quantités de LiNOx en Afrique dans la simulation KE\_AMMA. Les résultats de ce test (figure 3.21) montrent que cette augmentation de LiNOx a conduit à une augmentation de 40-50% (environ 50-60 pptv) des concentrations de NO<sub>x</sub> entre 300hPa et 150hPa et de 10-30% (10-30 pptv) entre 600-400hPa. Les concentrations d'O<sub>3</sub> ont augmenté de 8-10% (4-6 ppbv) dans la haute troposphère et de 3-5% (2-3 ppbv) au dessous de 400hPa.

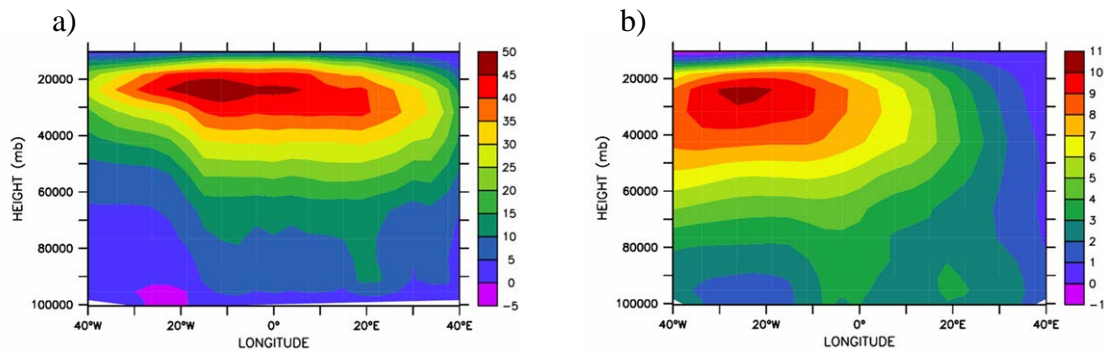


FIG. 3.21 – Différence en pourcentage entre les concentrations de NOx (a) et O<sub>3</sub> (b) simulées par LiNOx2 et KE\_AMMA ; moyenne sur août 2006 entre 5°N et 20°N.

La comparaison des résultats du test LiNOx2 avec les profils verticaux de NO observés et calculés par les autres simulations (figure 3.22) montre que cette simulation reproduit mieux les valeurs de NO observées dans la haute troposphère. Une augmentation d'environ 50pptv de NO est simulée par LiNOx2 au dessus de 400hPa. Les profils verticaux simulés montrent que malgré l'augmentation de 50% des LiNOx le modèle sous-estime toujours les concentrations élevées de NO mesurées dans la haute troposphère. Il est difficile pour le modèle de reproduire les pics de NO observés à cause de l'incertitude qui subsiste dans les paramétrisations de NO<sub>x</sub> produits par les éclairs comme le montre Tost et al. (2007).

### 3.4 Impact des NO<sub>x</sub> produits par les éclairs.

Une autre explication possible au désaccord entre le modèle et les observations est la sous-estimation des émissions de NO<sub>x</sub> par les sols qui peuvent contribuer aussi, sous l'influence du transport convectif, aux valeurs élevées de NO observées dans la haute troposphère. En effet, L'inventaire Yienger and Levy (1995), utilisé dans les simulations, semble sous-estimer les émissions de NO<sub>x</sub> par les sols d'après Jaeglé et al. (2005).

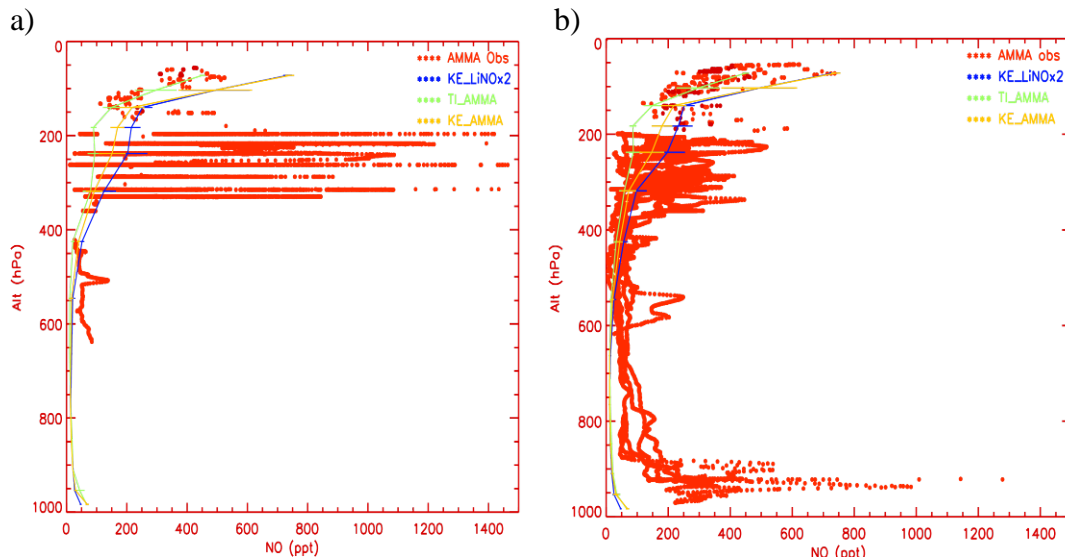


FIG. 3.22 - Profils verticaux de NO (pptv) (en rouge) observés et simulés dans les catégories Conv (a) et No\_Conv (b) ; résultats de KE\_AMMA (orange), TI\_AMMA(vert) et LiNOx2 (bleu).

La figure 3.23a illustre l'effet de la convection sur la distribution verticale des NO<sub>x</sub> dans la troposphère au dessus de l'Afrique de l'Ouest. En supprimant la contribution du transport convectif, le modèle simule une augmentation importante des concentrations de NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère (plus de 180%) et dans la basse troposphère (jusqu'à 80%). L'augmentation des concentrations dans la basse troposphère s'explique par l'accumulation des émissions à la surface (émissions anthropiques et émissions par les sols). L'augmentation des concentrations dans la haute troposphère peut s'expliquer par la non redistribution des LiNOx en l'absence du transport convectif. L'effet de la non redistribution des NO<sub>x</sub> est également visible par la diminution de 20% à 40% des concentrations simulées dans la moyenne troposphère.

La figure 3.23b montre la distribution verticale des NO<sub>x</sub> dans la simulation Conv\_LiNOx\_off où la convection et les LiNOx ont été simultanément supprimés dans le modèle. L'absence des LiNOx induit une réduction des concentrations de NO<sub>x</sub> dans la moyenne et la haute troposphère. L'absence de la convection induit une accumulation des émissions à la surface.

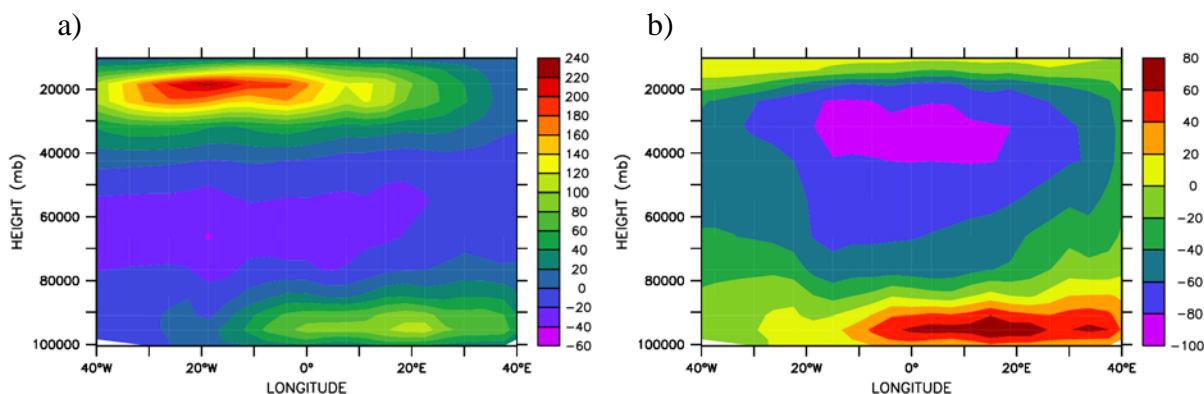


FIG. 3.23 – Différence en pourcentage entre les concentrations de  $\text{NO}_x$  calculées par Conv\_off (a) et Conv\_LiNOx\_off (b), et celles simulées par KE\_AMMA ; moyenne sur août 2006 entre  $5^\circ\text{N}$  et  $20^\circ\text{N}$ .

### 3.5 Influence de la convection et des LiNOx sur l’ozone dans la haute troposphère

La figure 3.24 représente les données d’ $\text{O}_3$  observées par les avions MOZAIC dans la haute troposphère pendant les vols effectués entre Windhoek (Namibie) et l’Europe en juillet et en août 2006 (voir figure 1.12, chapitre1). Les données du programme MOZAIC (Marenco et al., 1998 ; Law et al., 1998) sont présentées au chapitre 1 (section 1.4.3). La distribution des données montre que les concentrations d’ $\text{O}_3$  mesurées varient en général entre 30 ppbv et 50 ppbv dans les régions entre l’équateur et  $15^\circ\text{N}$ . En dehors de ces régions, les concentrations augmentent jusqu’à plus de 80 ppbv.

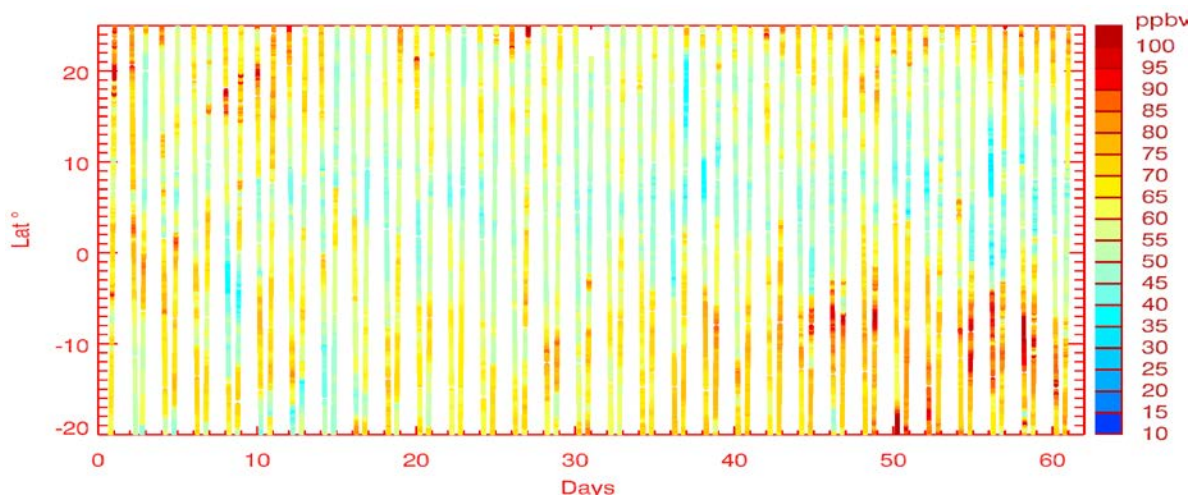


FIG. 3.24 - Données d’ $\text{O}_3$  (ppbv) mesurées par les avions MOZAIC dans la haute troposphère en juillet et en août 2006 pendant les vols effectués entre Windhoek (Namibie) et l’Europe.

La figure 3.25 représente les concentrations d’ $\text{O}_3$  simulées par KE\_AMMA interpolées sur les trajectoires de vol des avions MOZAIC. Les résultats montrent que le gradient positif d’ $\text{O}_3$  en direction des deux pôles observé par MOZAIC est également reproduit par le modèle. Les concentrations simulées sont cependant sous-estimées.



### 3.5 Influence de la convection et des LiNOx sur l’ozone dans la haute troposphère.

Ces résultats indiquent que les valeurs modérées d’O<sub>3</sub> ont été observées et simulées dans les régions de la convection. Les valeurs élevées d’O<sub>3</sub> ont été observées et simulées loin de ces régions.

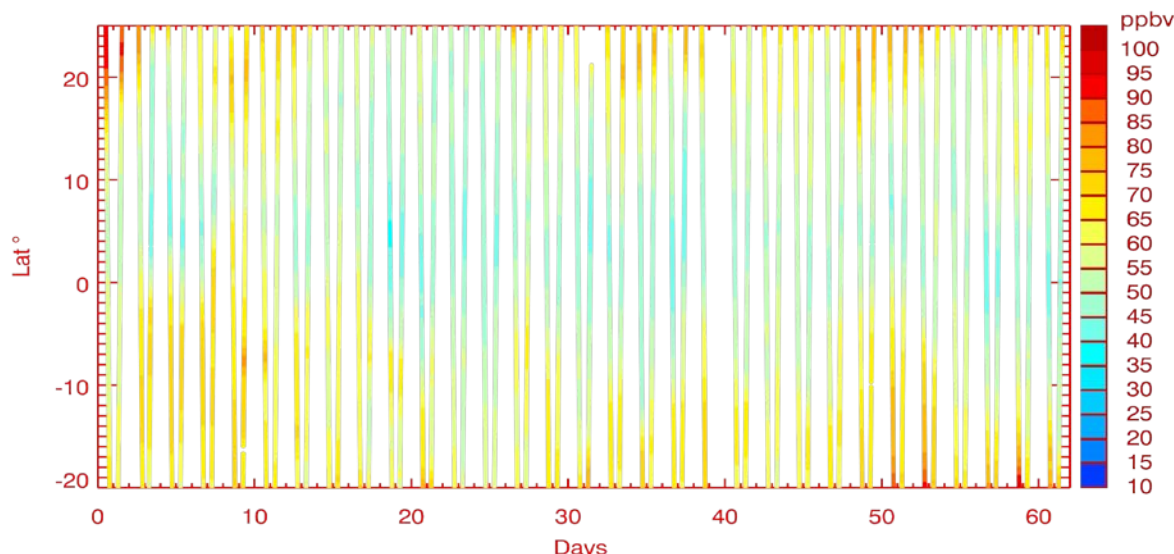


FIG. 3.25 - Concentrations d’O<sub>3</sub> (ppbv) simulées KE\_AMMA interpolées sur les trajectoires de vol des avions MOZAIC en juillet et août 2006.

L’analyse de la distribution d’O<sub>3</sub> dans la simulation Conv\_off (figure 3.26) montre que dans LMDz\_INCA, la convection conduit à une réduction de 10-20% des concentrations d’O<sub>3</sub> dans la haute troposphère entre 300hPa et 200hPa. Dans la moyenne troposphère, les concentrations augmentent par contre d’environ 20%. Ces résultats sont en accord avec les résultats de Doherty et al. (2005) obtenus avec le modèle de chimie et transport STOCHEM-HadAM3 (Sanderson et al., 2003). Le mélange vertical de précurseurs d’ozone émis à la surface, notamment les COVs le CO et les NO<sub>x</sub>, associé à la subsidence de masses d’air riches en NO<sub>x</sub> depuis la haute troposphère vers les basses couches conduisent à une réduction (respectivement augmentation) d’O<sub>3</sub> dans la haute (respectivement moyenne) troposphère. Cela peut expliquer ainsi les valeurs modérées d’O<sub>3</sub> observées par MOZAIC dans la haute troposphère.

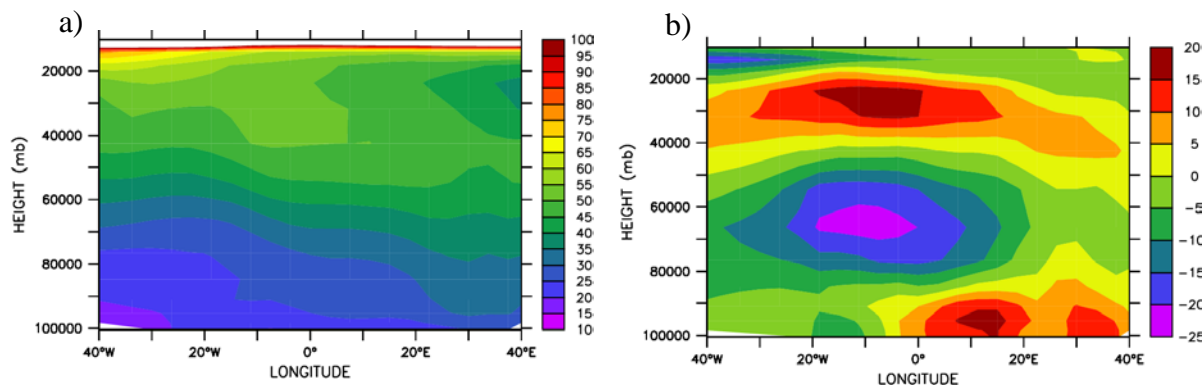


FIG. 3.26 - Distribution verticale d’O<sub>3</sub> (ppbv) simulée par KE\_AMMA moyennée sur août 2006 et entre 5°N et 20°N (a) ; différence en pourcentage avec la simulation Conv\_off (Conv\_off – KE\_AMMA/KE\_AMMA) (b).

La diminution des concentrations d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère observée par MOZAIC et simulée par LMDz\_INCA a également été constatée dans de précédentes études. Folkins et al. (2002a) ont montré que le transport convectif de masses d'air pauvres en ozone depuis les basses couches joue un rôle important dans la réduction des concentrations d'O<sub>3</sub> dans les tropiques entre 11km et 16km. Récemment, Sauvage et al. (2007a) a également montré, notamment à l'aide des données MOZAIC, un minimum d'O<sub>3</sub> entre 20°S et 20°N dans la haute troposphère.

Ces résultats montrent ainsi qu'au niveau local, la convection a une tendance négative aux concentrations d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère. Cependant, le transport convectif enrichit la haute troposphère de précurseurs d'O<sub>3</sub> et suivant la complexité de la circulation atmosphérique à ces niveaux d'altitude, la convection peut avoir une tendance positive aux concentrations d'O<sub>3</sub> en dehors des régions de la convection. C'est ce qu'ont montré aussi Sauvage et al. (2007a). Un gradient positif des concentrations d'O<sub>3</sub> a été observé de part et d'autre de la ZCIT. Ils ont démontré le rôle de la circulation de Hadley comme mécanisme contribuant à la redistribution de précurseurs d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère ce qui conduit à la production photochimique d'O<sub>3</sub>, principalement par les LiNOx, dans les branches de retour de ces cellules. Ce gradient méridional d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère est également simulé par LMDz\_INCA (figure 3.27).

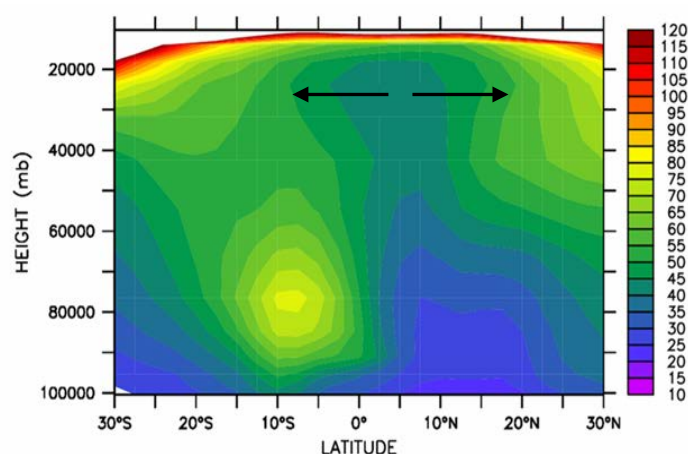


FIG. 3.27 - Distribution verticale et méridionale d'O<sub>3</sub> (ppbv) dans la simulation KE\_AMMA ; moyenne sur août 2006 et entre 20°W et 40°E.

La contribution des branches de retour des cellules de Hadley à la redistribution des masses d'air dans la haute troposphère est montrée aussi par la distribution des traceurs AT1 et AT2 décrits au chapitre 2. Ces traceurs ont été définis au Sahel de part et d'autre de la ZCIT afin d'étudier le transport convectif dans LMDz\_INCA. La distribution verticale de ces traceurs (figure 3.28) montre qu'ils sont transportés par la convection jusqu'à la haute troposphère au dessus des régions où ils ont été émis. Dans la haute troposphère, les traceurs sont redistribués en direction des pôles suivant la localisation de leur région d'émission (au nord ou au sud de la ZCIT),

### 3.5 Influence de la convection et des LiNOx sur l'ozone dans la haute troposphère.

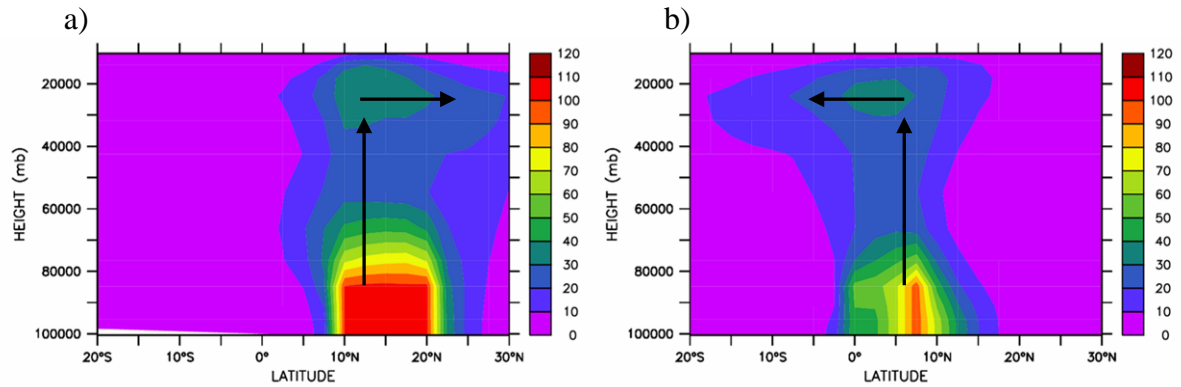


FIG. 3.28 - Distribution verticale des traceurs AT1(a) et AT2(b) en moyenne sur août 2006 et entre 15°W-30°E.

La figure 3.29 présente les résultats des simulations LiNOx\_off et Conv\_LiNOx\_off sur la distribution verticale d'O<sub>3</sub>. La suppression des LiNOx dans le modèle induit une réduction de 20-30% des concentrations d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère entre 400hPa et 200hPa. Les moyennes et les basses couches sont également affectées par une réduction de 5-15% des concentrations. Ainsi, alors que le transport convectif diminue les concentrations d'O<sub>3</sub>, les LiNOx induisent une production d'O<sub>3</sub>.

Les résultats de la simulation Conv\_LiNOx\_off montrent l'effet combiné de la suppression des LiNOx et du transport convectif sur l'ozone en Afrique de l'Ouest. Les concentrations d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère ont diminué d'environ 10-15% au dessus de l'Afrique de l'Ouest dans cette simulation. Dans la moyenne troposphère, les résultats montrent une réduction de près de 30% des concentrations d'O<sub>3</sub>. Ces résultats montrent de plus un gradient Est-Ouest négatif dans la moyenne et la haute troposphère. Cela indique qu'en présence de la convection et des LiNOx, la production d'O<sub>3</sub> dans le modèle augmente plus au dessus de l'océan Atlantique qu'au dessus des régions de la convection. Ces résultats rejoignent ainsi ceux discutés précédemment à savoir que c'est loin des régions de la convection en Afrique de l'Ouest qu'il y a plus de production d'O<sub>3</sub>.

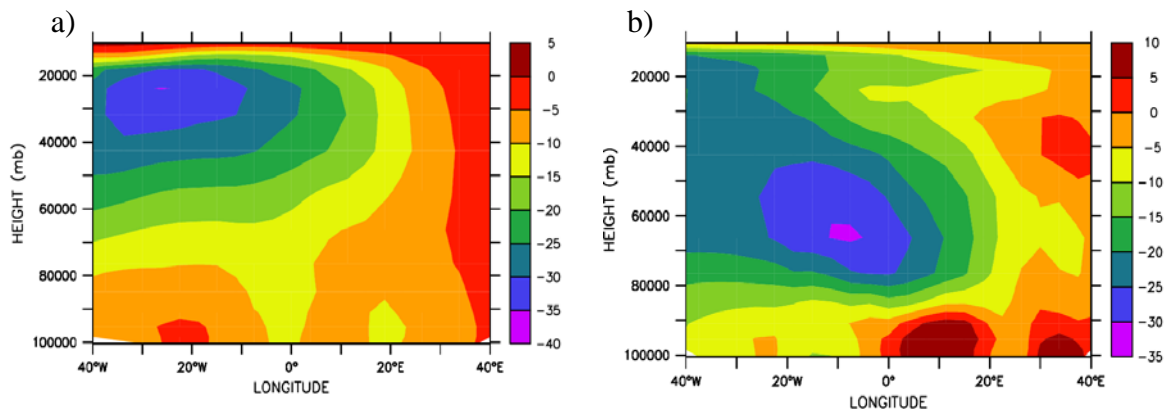


FIG. 3.29 - Différence en pourcentage entre les concentrations d'O<sub>3</sub> simulées par LiNOx\_off (a) et Conv\_LiNOx\_off (b), et KE\_AMMA ; moyenne sur août 2006 entre 5°N et 20°N.



Les figures 3.30 illustrent plus clairement l'impact de la convection et des LiNO<sub>x</sub> sur les concentrations de CO, NO<sub>x</sub> et d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère. Ces figures représentent les diagrammes Hovmoller (temps versus longitude) construits à partir de la différence absolue entre la simulation KE\_AMMA et la simulation Conv\_LiNO<sub>x</sub>\_off. Les résultats ont été moyennés entre 5°N et 17.5°N et entre les niveaux d'altitude 318hPa et 182hPa. La distribution des concentrations de CO montre une importante variabilité journalière qui est liée à la variabilité du transport convectif dans le modèle. Les résultats montrent un gradient positif en direction de l'Ouest dans la distribution de CO. Cela témoigne du transport zonal à partir des zones d'émissions sur le continent vers la partie Ouest de l'Afrique et vers l'océan. La variabilité journalière des concentrations des NO<sub>x</sub> est liée à la variabilité des LiNO<sub>x</sub> et du transport convectif. Les plus fortes concentrations sont simulées sur le continent notamment vers les régions les plus à l'Est où il y a une forte production de LiNO<sub>x</sub>.

La distribution des concentrations d'O<sub>3</sub> montre aussi une variabilité journalière importante et indique une forte production au dessus des régions côtières à l'Ouest et au dessus de l'océan Atlantique. Ainsi, entre le 08 et le 13 août le modèle simule une augmentation d'environ 2ppbv/jour des concentrations d'O<sub>3</sub> dans ces régions. La période entre le 24 août et le 27 août montre également une augmentation d'O<sub>3</sub> d'environ 2ppbv/jour. Bien que les fortes concentrations de NO<sub>x</sub> soient observées plutôt à l'Est c'est vers l'Ouest qu'il y a production d'O<sub>3</sub> et cela peut s'expliquer par l'enrichissement des masses d'air par des précurseurs d'ozone au niveau du continent et au cours de leur advection vers l'Ouest dans la haute troposphère.

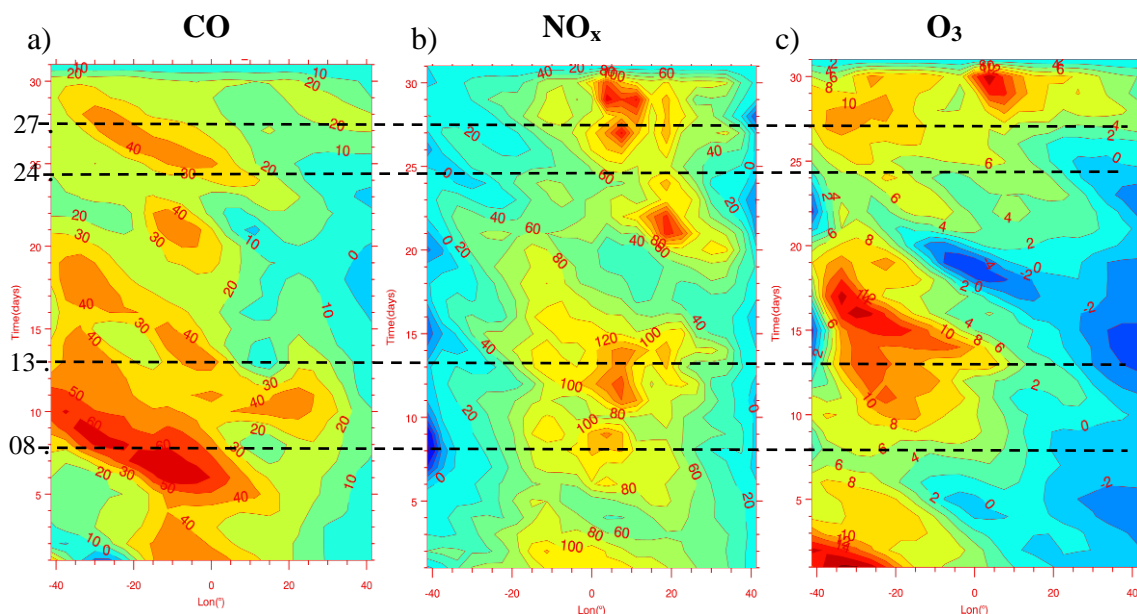


FIG. 3.30 – Variabilité journalière (1-31 août 2006) et longitudinale (40°W-40°E) (Diagrammes Hovmoller) des concentrations de CO (a, en ppbv), NO<sub>x</sub> (b, en pptv) et d'O<sub>3</sub> (c, en ppbv); différence absolue entre KE\_AMMA et Conv\_LiNO<sub>x</sub>\_off; moyenne entre 5°N-et 17.5°N et entre 318hPa et 182hPa.

Les données et les résultats de LMDz\_INCA présentés dans cette section montrent que les LiNO<sub>x</sub> induisent une augmentation des concentrations d'O<sub>3</sub> jusque dans les basses couches. La convection joue un rôle important dans la redistribution verticale des LiNO<sub>x</sub> et des émissions de surface. Cette redistribution, qui conduit au mélange de masses d'air de différentes compositions chimiques, est à l'origine de la réduction des concentrations d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère et de l'augmentation des concentrations dans la moyenne troposphère. Les résultats montrent aussi que l'advection de masses d'air riches en précurseurs d'O<sub>3</sub>, notamment les LiNO<sub>x</sub>, dans la haute troposphère depuis les régions de la convection conduit à la production d'environ 2 ppbv/jour d'O<sub>3</sub> au dessus de l'océan Atlantique.

L'analyse de l'évolution de la composition chimique des masses d'air échantillonnées par le D\_F20 en utilisant des rétro-trajectoires calculées à l'aide du modèle lagrangien CiTTYCat (Evans et al., 2000 ; Real et al., 2007) et des images infrarouges de METEOSAT a permis de montrer une augmentation d'O<sub>3</sub> d'environ 4-10 ppbv/jour dans les masses d'air influencées par la convection (H. Schlager, DLR, communication personnelle). Ces augmentations d'O<sub>3</sub> sont supérieures à celles calculées par LMDz\_INCA car seules les données du D\_F20 mesurées dans des masses d'air les plus riches en NO<sub>x</sub> (1-2.5 ppbv) ont été considérées. La production d'O<sub>3</sub> dans ces masses d'air est donc plus grande. Aussi, la sous-estimation des LiNO<sub>x</sub> dans le modèle induit une sous-estimation de la production d'O<sub>3</sub>.

### 3.6 Conclusion

L'objectif de ce chapitre était d'analyser les données de la campagne AMMA et les simulations de LMDz\_INCA afin d'étudier l'influence de la convection et des émissions locales sur la composition chimique de l'atmosphère en Afrique équatoriale. Les données AMMA ont montré plusieurs cas mettant en évidence l'influence de la convection sur la chimie de la haute troposphère. Ainsi, des concentrations de près de 200 ppbv et 1.4 ppbv respectivement de CO et de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ont été mesurées par le F\_F20 à environ 200hPa autour d'un système convectif (M2, figure 3.6). Des concentrations d'environ 140 ppbv et 0.8 ppbv, respectivement de CO et de HCHO ont été mesurées par le D\_F20 dans la haute troposphère autour du même système convectif étudié par le F\_F20. Les faibles valeurs d'O<sub>3</sub> mesurées par les deux avions aux endroits où les pics de CO et H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ont été mesurés, indiquent le transport de masses d'air pauvres en ozone par la convection depuis la basse troposphère. Les données montrent des concentrations de CO et de NO plus élevées dans les masses d'air influencées par la convection (200 ppbv et 1.5 ppbv respectivement) que dans les masses d'air qui n'ont pas été influencées par la convection (150 ppbv et 0.6 ppbv respectivement) quelques heures (ou jours) avant les mesures. Les observations révèlent par ailleurs les concentrations de CO les plus faibles dans les cas convectifs dues au détrainement dans la haute troposphère.

La convection induit aussi une forte production de NO<sub>x</sub> par les éclairs. Ainsi, les mesures de NO et NO<sub>y</sub> effectuées par le D\_F20 montrent que des concentrations de plus de 1 ppbv et 2.5 ppbv respectivement ont été mesurées dans la haute troposphère

autour du système convectif étudié. Cela indique ainsi une forte production de  $\text{LiNO}_x$ . Les simulations de LMDz\_INCA montrent que le modèle reproduit bien les données de CO, HCHO,  $\text{H}_2\text{O}_2$  et d' $\text{O}_3$  observées pendant certains vols (e.g. CO, HCHO et  $\text{O}_3$  du D\_F20 le 15 août). Le modèle montre cependant des désaccords avec les observations de certains vols (e.g. CO du F\_F20 et HCHO du B\_146 le 15 août). Les profils verticaux de CO et NO simulés montrent que le modèle sous-estime les concentrations élevées observées dans la haute troposphère. Ces désaccords peuvent être dus à la faible résolution du modèle d'une part et, d'autre part, à la difficulté des modèles globaux en général et de LMDz\_INCA en particulier à reproduire la convection en temps et en lieu exact. La comparaison avec les données de NO et  $\text{NO}_y$  le long des vols et avec les profils verticaux montrent que le modèle sous-estime la production de  $\text{NO}_x$  par les éclairs en Afrique de l'Ouest. Cette étude montre qu'il faudra augmenter de 50% au moins les quantités de  $\text{LiNO}_x$  en Afrique dans le modèle afin que celui-ci puisse reproduire le profil moyen de NO observé dans la haute troposphère. Le désaccord avec les observations peut aussi être du à l'incertitude qui subsiste dans la modélisation des  $\text{LiNO}_x$  dans les modèles globaux en général (Tost et al., 2007). Une sous-estimation des quantités d'émissions de  $\text{NO}_x$  par les sols au Sahel peut expliquer aussi le désaccord avec les observations étant donné que ces émissions peuvent être redistribuées par la convection vers la haute troposphère.

Les simulations réalisées montrent des résultats différents (e.g. profils verticaux de CO et NO) et indiquent que les émissions et le schéma de convection utilisés peuvent influencer les résultats du modèle. Ainsi, avec le schéma de convection d'Emanuel (présenté au chapitre 2), utilisé par les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF, le modèle transporte plus d'émissions (e.g. CO et HCHO) vers la haute troposphère. La simulation TI\_AMMA montre que le transport convectif avec le schéma de Tiedtke (présenté au chapitre 2) influence plus la composition chimique de la basse et la moyenne troposphère. Les résultats de cette étude montrent que le schéma d'Emanuel représente d'une façon plus réaliste le transport par la convection profonde en Afrique de l'Ouest. Les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF montrent aussi des différences dans les concentrations simulées (e.g. CO, HCHO,  $\text{H}_2\text{O}_2$  et  $\text{NO}_x$ ) qui peuvent s'expliquer par la différence des émissions utilisées.

Les tests de sensibilité réalisés (Conv\_off,  $\text{LiNO}_x$ \_off) montrent que la convection et les  $\text{LiNO}_x$  expliquent 40% et 80% respectivement des concentrations de CO et  $\text{NO}_x$  simulées dans la haute troposphère. Le transport convectif explique également les concentrations d'isoprène simulées dans la haute troposphère. La convection peut redistribuer les  $\text{LiNO}_x$  vers la moyenne troposphère et peut expliquer jusqu'à 20-60% des  $\text{NO}_x$  simulés. Dans LMDz\_INCA, les  $\text{LiNO}_x$  induisent une augmentation d'environ 60% de  $\text{HNO}_3$  et de OH dans la haute troposphère. Cette étude montre aussi que dans le modèle, les  $\text{LiNO}_x$  n'affectent pas seulement la distribution de  $\text{NO}_x$  dans la troposphère en Afrique, mais également sa capacité oxydante. La simulation Conv\_ $\text{LiNO}_x$ \_off montre que la convection et les  $\text{LiNO}_x$  peuvent induire une augmentation d' $\text{O}_3$  jusqu'à 2ppbv/jour dans la haute troposphère notamment au dessus de l'océan Atlantique. La sous-estimation des  $\text{LiNO}_x$  dans le modèle induit une sous-estimation de leur contribution à l'ozone. La contribution des  $\text{LiNO}_x$  et des différentes émissions africaines au budget régional d' $\text{O}_3$  en Afrique sera analysée plus en détail dans le chapitre 5.

## Chapitre 4

# Influence des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale.

### 4.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est d'étudier l'influence des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sur la composition chimique de l'atmosphère en Afrique équatoriale pendant la saison de la mousson en été 2006, en analysant les données de la campagne AMMA et les simulations de LMDz\_INCA. La composition chimique de l'atmosphère en Afrique équatoriale peut, certes, être influencée par les émissions locales de polluants, redistribuées par la convection profonde qui caractérise les régions tropicales (Jonquière et Marenco, 1998), mais également par le transport de polluants à partir d'autres régions comme l'Afrique centrale (Sauvage et al. 2005) où d'importantes quantités de CO, NO<sub>x</sub> et COVs sont émises par les feux de biomasse chaque été. L'étude effectuée au chapitre 2 a montré que pendant l'été 2006 de fortes concentrations de CO, NO<sub>2</sub> et HCHO ont été observées par MOPITT et SCIAMACHY et simulées par LMDz\_INCA en Afrique centrale, au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée. Plusieurs études ont discuté des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale et de leur influence sur l'ozone troposphérique en Afrique (Marufu et al., 2000 ; Aghedo et al., 2007 ; Sauvage et al., 2005, 2007c). Garstang et al. (1996), ont montré que les alizés sud-est favorisent le transport des gazes et des aérosols à partir de l'Afrique centrale vers l'océan Atlantique pendant la saison de la mousson. La composition chimique de la haute troposphère en Afrique de l'ouest peut également être influencée par le transport à grande distance de polluants depuis l'Asie. Récemment, Barret et al. (2008), à travers une étude d'assimilation des observations satellites de CO par l'instrument MLS dans le modèle globale MOCAGE (Teyssedre et al., 2007), ont montré le transport de CO par le TEJ depuis l'Asie du Sud-Est (Chine et Inde notamment) vers l'Afrique de l'Ouest pendant la saison de la mousson.

Pendant la campagne AMMA, plusieurs vols d'avions ont été effectués en direction du Golfe de Guinée et du Sahel dans le but d'étudier la distribution méridionale de l'ozone et de ses précurseurs, et d'évaluer l'impact des émissions feux de biomasse de

l'Afrique centrale et du transport à grande distance sur la composition chimique de l'atmosphère en Afrique équatoriale. L'analyse des données satellitaires de MOPITT ainsi que les prévisions réalisées quotidiennement par LMDz-INCA en 2006 ont permis de programmer et de réaliser certains vols. Ainsi, le 13 août 2006 par exemple, de fortes concentrations de CO ont été prévues par le modèle et observées ensuite par MOPITT au dessus du Golfe de Guinée. Les vols effectués par le D\_F20 et le M55 ce jour la ont mesuré de fortes concentrations de CO, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub> dans cette région. Plusieurs autres vols ont été effectués à partir de Niamey (Niger) et Ouagadougou (Burkina Faso) en direction du Golfe de Guinée. On désignera ces vols par les vols TLD (Transport à Longue Distance) tout au long de ce chapitre.

L'objectif de ce chapitre est d'analyser les données collectées pendant les vols TLD afin d'étudier l'influence du transport à grande distance (e.g. depuis l'Afrique centrale) sur la distribution de l'ozone et de ses précurseurs en Afrique équatoriale pendant la saison de la mousson. L'analyse des données in-situ de la campagne AMMA sera accompagnée de l'analyse des résultats du modèle LMDz-INCA. Des tests de sensibilité sur les émissions et des simulations avec des traceurs inertes sont présentés pour compléter cette analyse et améliorer la compréhension des résultats du modèle. Ces différentes simulations pourront également expliquer d'éventuels désaccords entre le modèle et les observations.

## 4.2. Simulations LMDz-INCA et comparaison aux données AMMA

Cette première section est consacrée à l'analyse des données de la campagne AMMA collectées le long des vols TLD, et des sondages d'ozone à Cotonou (Bénin). Les données utilisées dans ce chapitre comportent les données No\_Conv présentées au chapitre 3 en plus des données des vols dédiés spécialement à l'étude du transport à longue distance. Les résultats de LMDz-INCA sont confrontés à ces observations pour une meilleure compréhension de l'impact du transport à longue distance sur la composition chimique de la troposphère en Afrique de l'Ouest. Une analyse des données de certaines espèces chimiques mesurées et simulées (e.g. CO, O<sub>3</sub>, NO, NO<sub>y</sub>) est ainsi présentée. La figure 4.1 montre les trajectoires du D\_F20 et du M55 pendant les vols TLD.

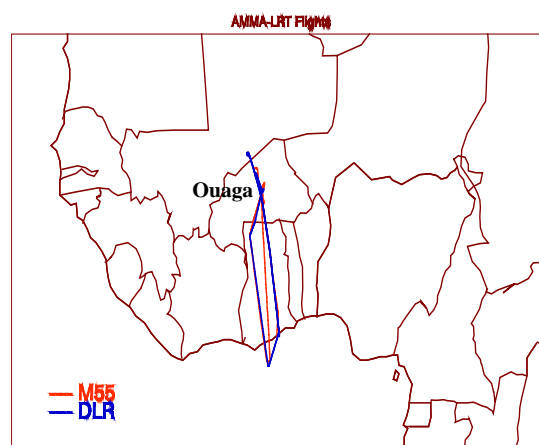


FIG. 4.1 – Trajectoires de vol du D\_F20 et du M55 le 13 août 2006 depuis Ouagadougou (Ouaga.).

### 4.2.1 Analyse des données des vols TLD

La figure 4.2 représente les concentrations de CO et d'O<sub>3</sub> mesurées par le D\_F20 durant les vols du 04 et du 13 août 2006. L'avion a effectué des vols aller-retour à partir de Ouagadougou en direction du Golfe de Guinée (figure 4.1a). Des pics de CO et d'O<sub>3</sub> ont été mesurés dans la moyenne troposphère, à environ 650hPa, au dessus du Golfe de Guinée. Ces fortes valeurs sont largement supérieures aux concentrations de fond habituelles dans une troposphère non polluée. En effet, les données de CO montrent des valeurs qui dépassent 450 ppbv, des valeurs largement supérieures aux concentrations de fond de CO dans la moyenne et la haute troposphère (environ 100 ppbv). Les concentrations de l'ozone mesurées dépassent aussi les concentrations de fond (entre 40 et 60 ppbv), avec des valeurs mesurées supérieures à 100 ppbv.

Sur la figure 4.2 sont représentés également les résultats des trois simulations du modèle présentées au chapitre 2 (KE\_WERF, TI\_AMMA et KE\_AMMA). Pour rappeler, la simulation KE\_WERF est basée sur le schéma de convection de Kerry Emanuel et utilise le cadastre d'émissions WERF (GFED pour les feux de biomasse et Edgar pour les émissions anthropiques) décrit au premier chapitre. Les simulations KE\_AMMA et TI\_AMMA utilisent respectivement les schémas de convection Kerry Emanuel et Tiedtke, et le cadastre d'émissions AMMA (voir chapitre 1). Dans toutes ces simulations, les émissions sont émises à la surface.

En général, le modèle reproduit de façon correcte la variation des concentrations de CO et d'O<sub>3</sub> observées le long des vols. Les maximums de CO, observés dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée, sont reproduits par le modèle. Cependant, ces maximums sont fortement sous-estimés par les trois simulations. Cette sous-estimation est d'autant plus importante dans la simulation KE\_WERF. KE\_AMMA simule environ 30-40 ppbv de CO de plus en comparaison aux résultats de KE\_WERF. Alors que les observations montrent une forte augmentation d'O<sub>3</sub> au dessus du Golfe de Guinée, les modèles simulent une réduction de l'ozone (40-50 ppbv d'O<sub>3</sub> mesurées).

Les observations montrent que les maximums de CO et d'O<sub>3</sub> mesurés au dessus du Golfe de Guinée le 13 août 2006 sont environ deux fois supérieures à celles mesurées le 04 août. En effet, environ 500 ppbv et 130 ppbv respectivement de CO et d'O<sub>3</sub> ont été mesurés le 13 août alors que le 04 août les maximums observés sont respectivement 250 ppbv et 70 ppbv. Cette différence importante des concentrations mesurées est due à une variabilité du transport des émissions des feux de biomasse entre le 04 août et le 13 août. Cette variabilité est discutée dans la section 4.3.3.

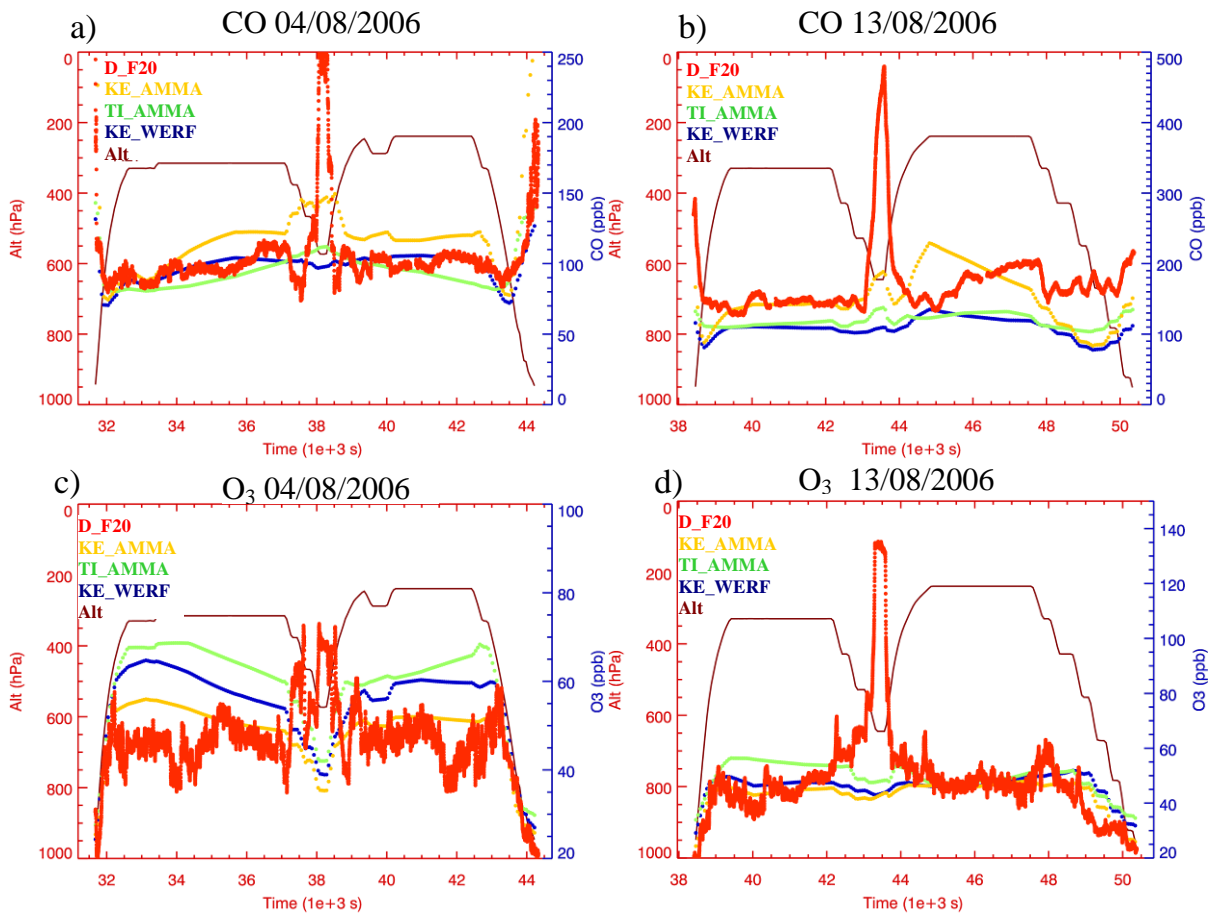


FIG. 4.2 - Données de CO et O<sub>3</sub> en ppbv (en rouge) mesurées par le D\_F20 le 04 août (a, c) et le 13 août (b, d) 2006. Résultats des simulations KE\_AMMA (orange), TI\_AMMA (vert) et KE\_WERF (bleu). Altitude (Alt en rouge foncé en hPa) versus temps (1e+3 s).

La figure 4.3 représente les concentrations de NO mesurées et simulées le long des vols du 04 et du 13 août 2006. Des concentrations élevées de NO (jusqu'à 1.1 ppbv) ont été mesurées dans la haute troposphère au dessus de l'Afrique de l'Ouest. L'étude effectuée au chapitre 3 a montré que ces fortes concentrations proviennent probablement d'une contribution des LiNOx (production de NO par les éclairs). Toutes les simulations du modèle sous-estiment les maximums de NO observés à cause d'une sous-estimation des LiNOx (chapitre 3). Comme pour le CO et l'O<sub>3</sub>, des valeurs élevées de NO (près de 0.2 ppbv) ont été mesurées aussi dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée. Les simulations du modèle ont calculé des valeurs faibles de NO au dessus de cette région. Cela peut expliquer ainsi les faibles valeurs d'ozone simulées au dessus du Golfe de Guinée.

## 4.2 Simulations LMDz\_INCA et comparaison aux données AMMA

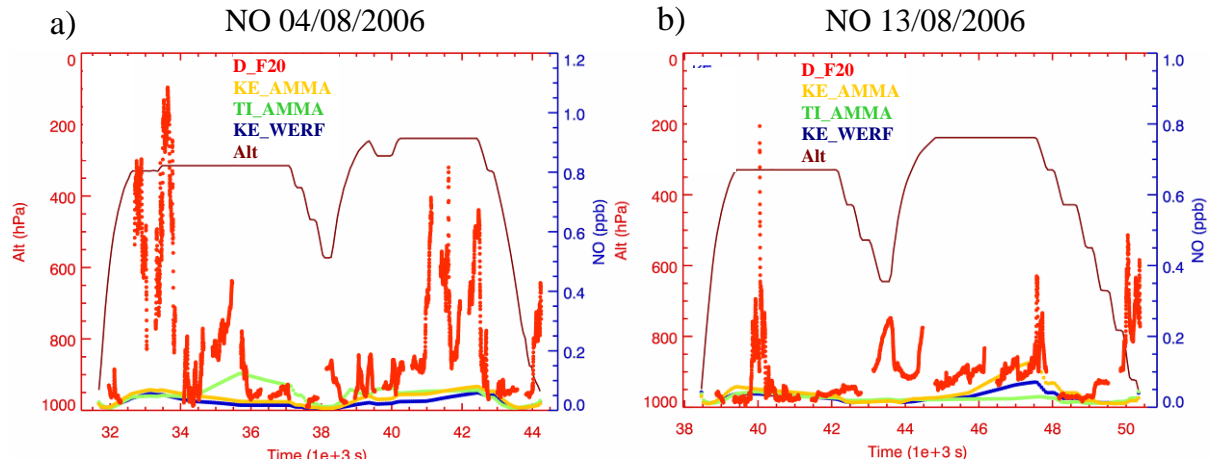


FIG. 4.3 - Données de NO en ppbv mesurées par le D\_F20 (en rouge) le 04 août (a) et le 13 (b) août 2006 ; Résultats des simulations KE\_AMMA (orange), TI\_AMMA (vert) et KE\_WERF (bleu). Altitude (Alt en rouge foncé en hPa) versus temps (10<sup>3</sup> s).

La figure 4.4 présente les concentrations d'O<sub>3</sub>, NO et NO<sub>y</sub> mesurées par le M55 le 04 et le 13 août 2006. Comme le D\_F20, le M55 a effectué aussi des vols aller-retour de Ouagadougou en direction du Golfe de Guinée. Des valeurs élevées ont été observées et simulées dans certaines parties des vols dans la haute troposphère. Les fortes valeurs, notamment de l'ozone, indiquent que les mesures ont été effectuées dans la basse stratosphère. Les simulations du modèle reproduisent assez bien la variabilité des concentrations de O<sub>3</sub>, NO et NO<sub>y</sub> mesurées. Cependant, les concentrations observées dans la basse stratosphère sont surestimées par le modèle. Ce désaccord peut s'expliquer par une surestimation de l'altitude de la tropopause dans le modèle, notamment dans les simulations KE\_AMMA et KE\_WERF. Les simulations du modèle sous-estiment également les concentrations de NO et NO<sub>y</sub> mesurées au dessus du Golfe de Guinée.



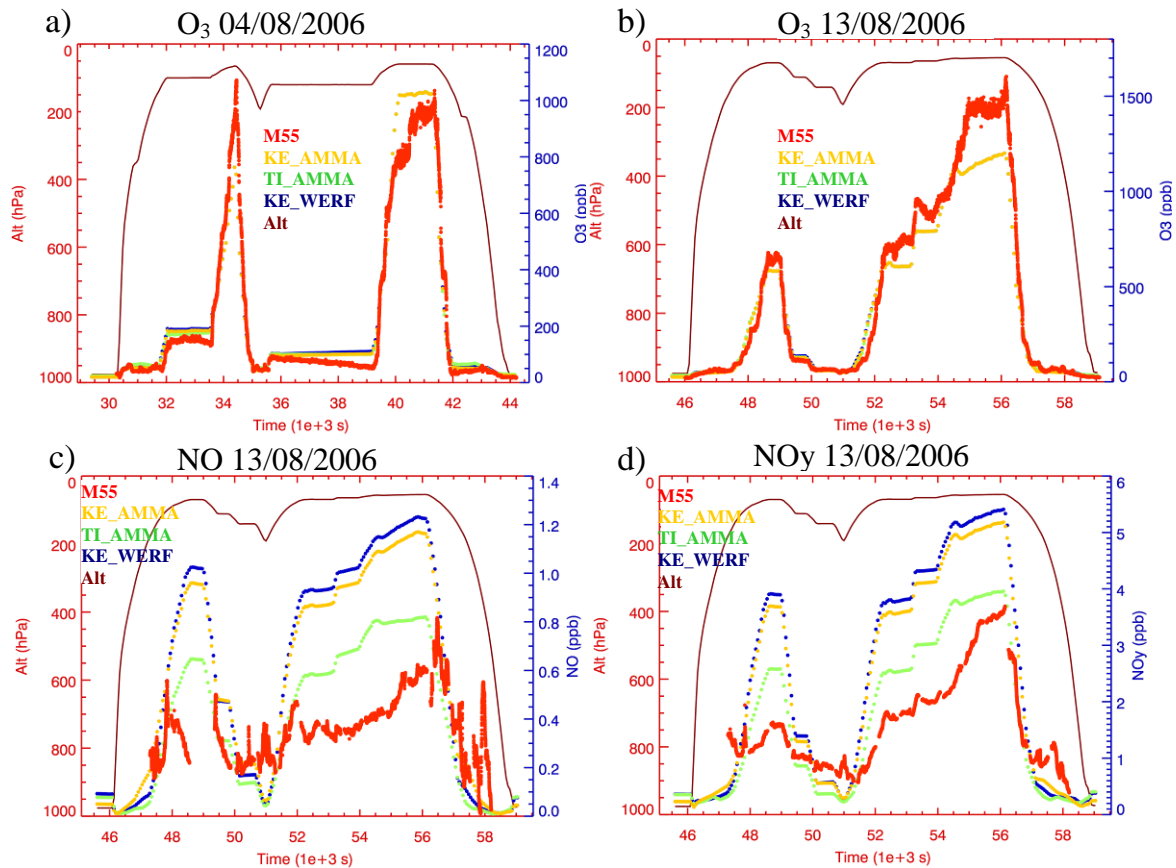


FIG. 4.4 - Données d'O<sub>3</sub> (a, b), NO (c) et NO<sub>y</sub> (d) en ppbv mesurées par le M55 (en rouge) le 04 août (a) et le 13 août (b, c, d) 2006. Résultats des simulations KE\_AMMA (orange), TI\_AMMA (vert) et KE\_WERF (bleu). Altitude (Alt en rouge foncé) en hPa versus temps (1e+3 s).

La figure 4.5 représente les concentrations de HCHO observées par le B\_146 et simulées par le modèle le 13 août 2006. Le B\_146 a effectué un vol à partir de Niamey (Niger) en direction du Golfe de Guinée. Des concentrations de plus de 1ppbv ont été observées dans la basse troposphère au sud de 10°N. Ces fortes concentrations peuvent être dues aux émissions biogéniques de HCHO dans ces régions forestières. Les résultats des simulations montrent que le modèle simule environ deux fois plus de HCHO dans la basse troposphère. Des concentrations élevées ont été observées aussi au dessus du Golfe de Guinée entre 600-800hPa à environ 5°N. Ces fortes valeurs peuvent être dues à aux émissions des feux de biomasse en Afrique centrale. Les simulations du modèle ne reproduisent pas ces fortes concentrations. Les valeurs simulées sont environ deux fois inférieures à celles observées.

Des concentrations élevées d'autres espèces chimiques ont également été observées près des côtes Guinéennes pendant la campagne AMMA. Ainsi, le B\_146 a mesuré aussi de fortes valeurs de PAN (plus de 800 pptv) et d'acétonitrile (plus de 400 pptv) dans la moyenne troposphère (Reeves et al., 2010). De fortes valeurs de HCHO (plus de 1 ppbv), RO<sub>2</sub> (20-25 pptv) et CO<sub>2</sub> (près de 390 ppmv) ont été observées aussi par le D\_F20 pendant les vols du 04 et du 13 août 2006 au dessus du Golfe de Guinée (Andrés-Hernández et al., 2009).

#### 4.2 Simulations LMDz\_INCA et comparaison aux données AMMA.

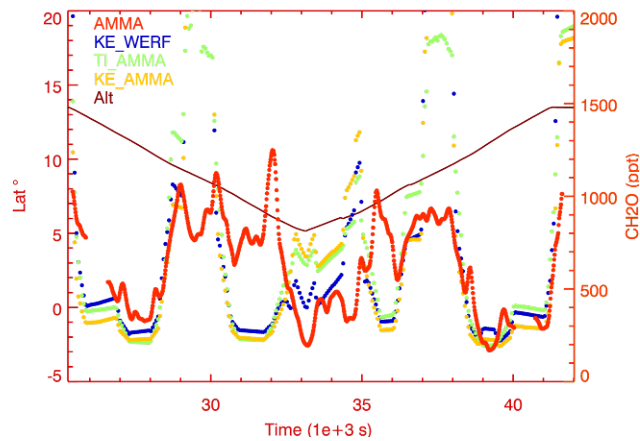


FIG. 4.5 - Concentrations de HCHO (en pptv) mesurées par le B\_146 (en rouge) le long du vol du 13 août 2006 et simulées par KE\_AMMA (orange), TI\_AMMA (vert), KE\_WERF (bleu). Latitude (Lat) versus temps (Time en  $1e+3$  s).

Sur la figure 4.6 sont représentées toutes les données de CO et d'O<sub>3</sub> mesurées par les 5 avions de la campagne AMMA durant les vols TLD. Cette figure montre plus clairement la distribution méridionale de CO et d'O<sub>3</sub> en Afrique de l'Ouest en juillet et en août 2006. Les plus fortes concentrations de ces espèces ont été observées dans la moyenne troposphère, entre 500 hPa et 750 hPa près du Golfe de Guinée (4°N-8°N). Les autres avions (F\_F20 et ATR) de la campagne AMMA ont également mesuré de fortes valeurs dans la moyenne troposphère près des côtes Guinéennes. Les rétro-trajectoires de masses d'air calculées par Ancellet et al. (2009), avec le modèle lagrangien FLEXPART, ont montré que les fortes concentrations de CO et d'O<sub>3</sub> observées par le F\_F20 le 19 août 2006 près de Cotonou (6.4°N, 2.5°E), entre la surface et 4km d'altitude, ont été mesurées dans des masses d'air ayant pour origine l'Afrique centrale.

Les concentrations élevées des espèces chimiques mesurées par les avions ont été observées, pour la plupart, loin des régions d'émissions ce qui permet de suggérer une contribution de la pollution transportée depuis d'autres régions (e.g. Afrique centrale, Afrique de l'Ouest). Andrés-Hernández et al. (2009) ont calculé un rapport NO/NO<sub>y</sub> faible (0.04-0.05) avec les données du D\_F20 mesurées au dessus du Golfe de Guinée. Cela indique que les masses d'air étudiées sont âgées et qu'elles ont été transportées depuis d'autres régions vers le Golfe de Guinée.

La figure 4.6 montre que d'importantes concentrations de CO (plus de 150 ppbv) ont été également mesurées dans la haute troposphère entre 200 hPa et 300 hPa au dessus du Golfe de Guinée et de l'Afrique de l'Ouest. Les données de CO<sub>2</sub> mesurées par le M55 le 13 août 2006 montrent des concentrations élevées (près de 380 ppmv) entre 100 hPa et 150 hPa au dessus du Golfe de Guinée (Real et al., 2010). Le transport convectif peut contribuer à ces concentrations élevées de CO et CO<sub>2</sub>. La circulation atmosphérique qui caractérise la haute troposphère en Afrique pendant la saison de la mousson, notamment par la présence du TEJ, permet de suggérer que le transport à grande distance peut également contribuer aux fortes concentrations de CO et CO<sub>2</sub>. Barret et al. (2008), en analysant les résultats du modèle MOCAGE et les données de l'instrument MLS et du programme MOZAIC, ont montré que les

émissions asiatiques peuvent être transportées, notamment par le TEJ, vers l'Afrique de l'Ouest. La section 4.3.3 montre que les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale peuvent également être transportées vers la haute troposphère en Afrique de l'Ouest. Real et al. (2010) ont également étudié et montré la redistribution de ces émissions des feux de biomasse vers la haute troposphère en Afrique de l'Ouest.

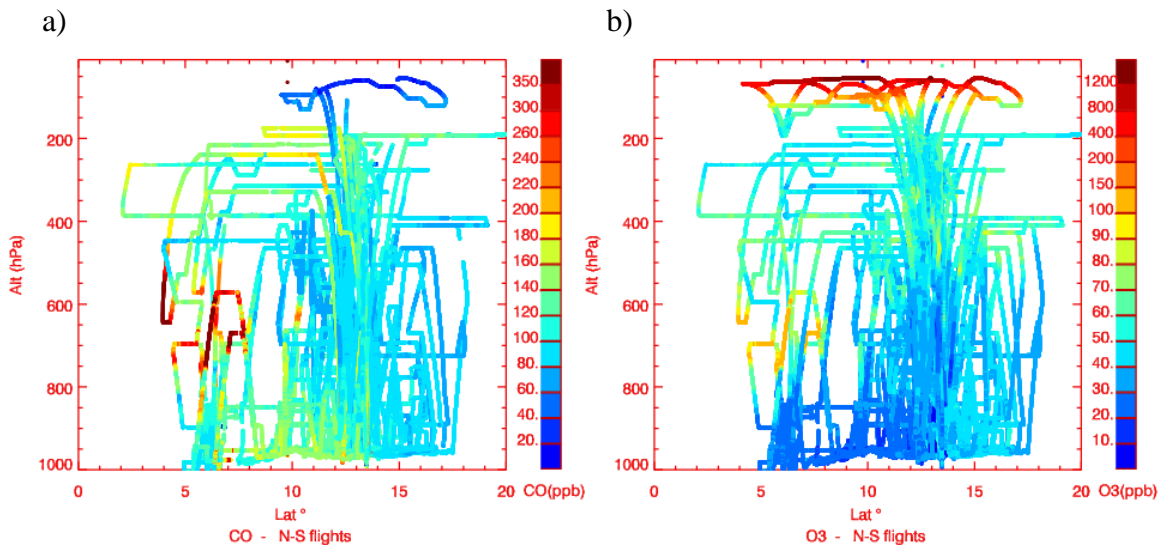


FIG. 4.6 – Concentrations de CO (a) et O<sub>3</sub> (b) (en ppbv) mesurées par les cinq avions de la campagne AMMA pendant les vols TLD en juillet et en août 2006.

#### 4.2.2 Sondages de l'ozone à Cotonou

Pendant la campagne AMMA, 22 sondages d'O<sub>3</sub> ont été effectués à Cotonou (Bénin) entre juin et août 2006. Les concentrations mesurées (figure 4.7) montrent une variabilité importante dans la moyenne troposphère entre 500 hPa et 750 hPa et dans la haute troposphère. Hormis le sondage du 30 juin où des valeurs d'O<sub>3</sub> de plus de 80 ppbv ont été mesurées, les autres sondages effectués en juin et au début de juillet montrent des valeurs d'O<sub>3</sub> dans la moyenne troposphère proches des concentrations de fond (20-50 ppbv observées au dessus de l'océan Atlantique d'après Jenkins et al., 2008). Cependant, dans les hautes altitudes à partir de 400 hPa, les valeurs mesurées en juin et au début de juillet dépassent 60 ppbv dans la majorité des sondages. Ces concentrations élevées peuvent être dues à la production d'O<sub>3</sub> par les LiNO<sub>x</sub> en Afrique de l'Ouest et à la redistribution méridionale des émissions africaines par la cellule de Hadley, comme discuté au chapitre 3. Le transport à longue distance d'émissions depuis d'autres régions par le TEJ peut contribuer également à ces valeurs élevées d'O<sub>3</sub> (Barret et al., 2008).

Les sondages effectués entre le 10 août et la fin du mois d'août montrent une augmentation des concentrations d'O<sub>3</sub> dans la moyenne troposphère, avec des valeurs qui dépassent 100 ppbv le 14 août, et une diminution des concentrations dans la haute troposphère. La migration de la ZCIT vers le nord en juillet et en août induit le déplacement au nord de la zone de convection et par conséquent les LiNO<sub>x</sub> sont produits loin des côtes Guinéennes. Cela peut expliquer ainsi la réduction d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère à Cotonou pendant cette période. La migration de la ZCIT résulte aussi d'une profonde intrusion des flux de mousson et des Alizés sud-est dans le

## 4.2 Simulations LMDz\_INCA et comparaison aux données AMMA.

continent. Cela induit une augmentation des quantités d'émissions des feux de biomasse transportées depuis l'Afrique centrale vers le Golfe de Guinée, ce qui peut expliquer aussi les concentrations élevées d'O<sub>3</sub> mesurées dans la moyenne troposphère en juillet et en août 2006.

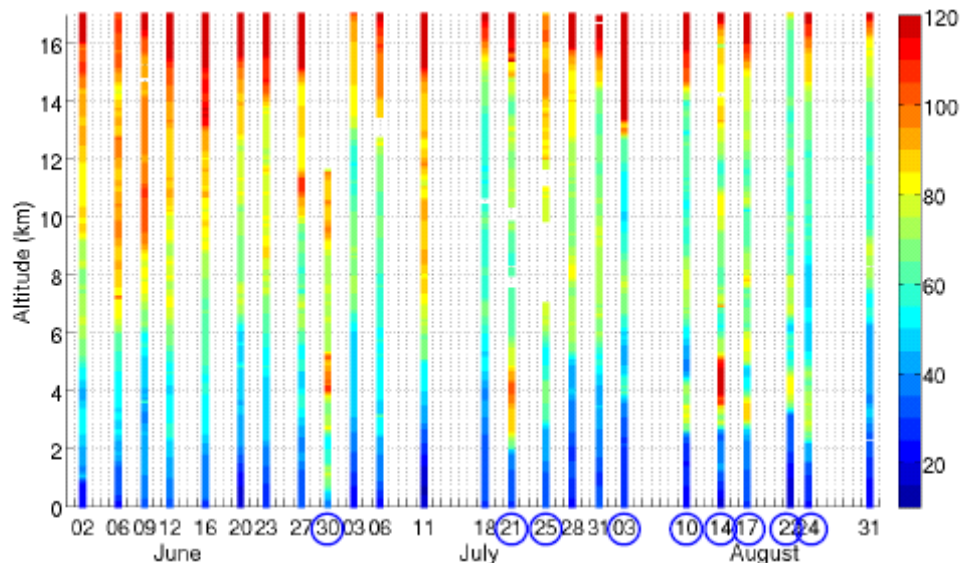


FIG. 4.7 - Sondages d'O<sub>3</sub> (ppbv) à Cotonou (Bénin, 6.4°N-2.5°E) entre le 01 juin et le 31 août 2006 (Thouret et al., 2009).

### 4.2.3 Sensibilité des résultats du modèle aux émissions

Une première étude de la sensibilité des résultats de LMDz\_INCA aux émissions utilisées a été présentée au chapitre 2 en comparant les résultats des simulations KE\_AMMA et KE\_WERF à des mesures satellites. Cette étude a montré que la simulation KE\_AMMA surestime les observations MOPITT en août 2006 en Afrique centrale et au dessus de l'océan Atlantique (figures 2.4 et 2.8, chapitre 2). Cependant, il est difficile d'estimer à quel degré cette simulation surestime les concentrations de CO car peu d'observations in-situ sont disponibles dans ces régions et aussi à cause de l'incertitude des observations MOPITT qui peut sous-estimer les pics de CO dans les régions fortement polluées comme l'Afrique centrale. La simulation KE\_WERF reproduit mieux les observations MOPITT en Afrique centrale. La comparaison des simulations KE\_AMMA et KE\_WERF aux observations AMMA, présentée dans cette section, vise à approfondir notre étude sur l'impact des émissions sur les résultats de LMDz\_INCA.

La figure 4.8 représente les concentrations de CO simulées par KE\_AMMA et KE\_WERF pour l'ensemble des vols TLD. Ces simulations montrent des distributions différentes de CO dans la troposphère en Afrique de l'Ouest. KE\_AMMA simule plus de CO que KE\_WERF dans presque toute la troposphère en Afrique de l'Ouest. La comparaison avec les observations (figure 4.5a) montre que KE\_AMMA reproduit mieux les valeurs élevées de CO observées dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée (4°N-8°N) mais simule ces valeurs élevées à une altitude plus basse (au dessous de 750hPa). Les maximums de CO ont été observés en effet dans la

couche 500-750hPa. Les concentrations de CO mesurées dans la haute troposphère à environ 200 hPa sont également mieux simulées par KE\_AMMA. Cette simulation surestime cependant les valeurs mesurées dans la basse troposphère notamment près du Golfe de Guinée (5°N-10°N). Ce désaccord peut provenir d'une surestimation des émissions anthropiques ou biogéniques de CO dans ces régions. La simulation KE\_WERF, sous-estime les concentrations de CO dans presque toute la colonne troposphérique au dessus du Golfe de Guinée.

L'augmentation des quantités d'émissions de CO dans le cadastre AMMA (134.1 Tg(CO)/an de plus en Afrique par rapport à WERF) peut expliquer les différences entre les résultats de ces deux simulations en Afrique de l'Ouest. Ces différences peuvent être dues aussi aux différences dans les distributions spatiales des émissions de CO utilisées dans cette région qui est plus étendue dans l'inventaire AMMA (figure 1.14, chapitre 2). L'augmentation des émissions des feux de biomasse dans le cadastre AMMA peut expliquer l'augmentation de CO simulée au dessus du Golfe de Guinée par KE\_AMMA. Ces résultats ainsi que ceux présentés dans les sections précédentes et au chapitre 2 montrent que c'est la simulation KE\_AMMA qui reproduit mieux la distribution de CO observée au dessus du Golfe de Guinée.

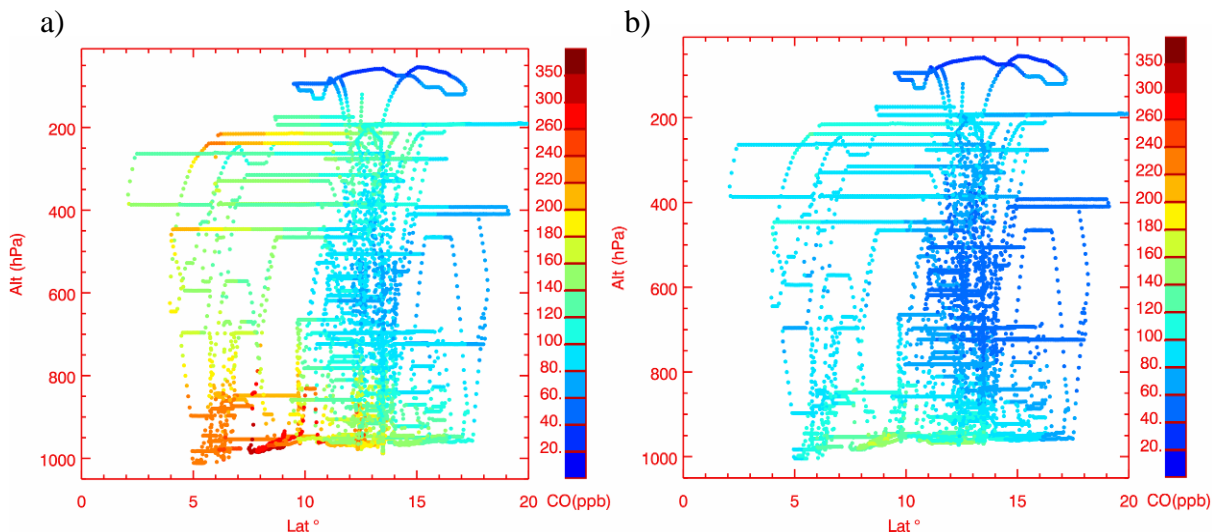


FIG. 4.8 – Concentrations de CO (ppbv) simulées par KE\_AMMA (a) et KE\_WERF (b) le long des vols TLD.

La figure 4.9 représente les concentrations de CO, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub> simulées par KE\_WERF et KE\_AMMA, moyennées en août 2006 et entre 3.75°W et 3.75°E. Ces figures donnent une meilleure vision de la distribution verticale et méridionale de ces espèces chimiques dans cette bande de longitudes où les vols TLD ont eu lieu. Les résultats montrent que le modèle simule de fortes concentrations dans la moyenne troposphère au dessus de l'océan Atlantique. Ces maximums sont cependant simulés un peu plus au sud du Golfe de Guinée (entre 10°S et 2°N). Cela explique donc la sous-estimation des concentrations élevées de CO, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub> observées dans la moyenne troposphère vers 4°N-8°N.



## 4.2 Simulations LMDz\_INCA et comparaison aux données AMMA.

La structure de la distribution verticale des concentrations de CO, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub> est similaire dans les deux simulations KE\_WERF et KE\_AMMA. Cependant, KE\_WERF simule des valeurs inférieures à celles de KE\_AMMA notamment dans la moyenne troposphère. Des maximums de 200ppbv, 60ppbv et 70pptv de CO, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub> respectivement sont simulés par KE\_WERF contre 400ppbv, 80ppbv et 100pptv de ces espèces chimiques respectivement dans KE\_AMMA. Comme l'a montré aussi la comparaison des profils verticaux de CO calculés par le modèle aux observations MOPITT (chapitre2), les concentrations simulées par KE\_WERF dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée sont faibles (120 ppbv) en comparaison à celles calculées par KE\_AMMA (220 ppbv).

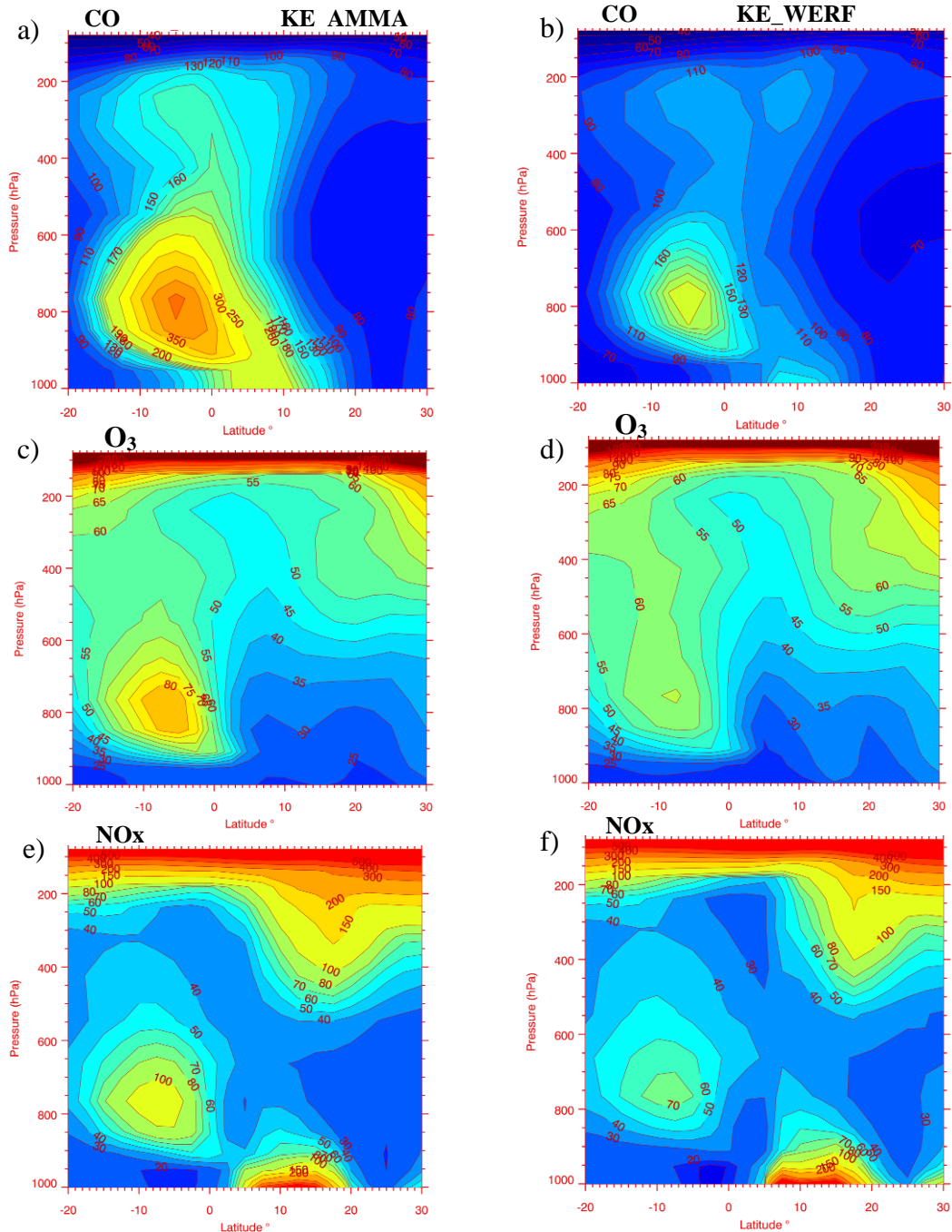


FIG. 4.9 - Coupes méridionales de CO, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub> (ppbv) moyennées en août 2006 et entre 3.75°W et 3.75°E; résultats de KE\_AMMA (à gauche) et KE\_WERF (à droite).

Les coupes verticales d'O<sub>3</sub>, CO et NO<sub>x</sub> montrent l'impact de l'augmentation des quantités d'émissions dans la simulation KE\_AMMA. Les fortes émissions des feux de biomasse en Afrique centrale utilisées par KE\_AMMA ont induit des augmentations de 200 ppbv, 20 ppbv et 30 ppbv respectivement de CO, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub> dans la moyenne troposphère au dessus de l'océan Atlantique en comparaison à KE\_WERF. Les résultats de cette étude montrent ainsi que les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale contribuent significativement aux concentrations d'O<sub>3</sub> et de ses précurseurs au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée.

Les résultats de KE\_AMMA sont plus proches des données AMMA. Cette simulation reproduit bien les valeurs élevées de CO, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub> observées dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée mais les simule plus au sud. Cela peut être dû au faible transport des émissions des feux de biomasse de l'Afrique centrale vers cette région. La prochaine section présente une analyse approfondie du transport depuis l'Afrique centrale.

### 4.3 Impact du transport à longue distance

L'objectif de cette section est d'étudier l'impact du transport à longue distance sur la composition chimique de l'Atmosphère en Afrique équatoriale. Dans les sections précédentes, les concentrations élevées d'O<sub>3</sub> et de ses précurseurs (e.g. CO, HCHO, NO, NO<sub>y</sub>) mesurées au dessus du Golfe de Guinée pendant la campagne AMMA, ont permis de suggérer l'influence des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale. En effet, ces fortes concentrations ne peuvent être expliquées seulement par une production chimique étant donné l'importance des quantités observées (e.g. près de 500ppbv de CO, 130ppbv d'O<sub>3</sub> et 1200pptv de HCHO). Sauvage et al. (2005) ont également mis en évidence cette intrusion des émissions de l'Afrique centrale vers le Golfe de Guinée par une analyse des données du programme MOZAIC et en étudiant l'origine des masses d'air dans la moyenne troposphère à Lagos (Nigeria). Des concentrations de 70ppbv d'O<sub>3</sub> ont été mesurées à Lagos en JJA entre 600hPa et 700hPa et l'analyse des trajectoires des masses d'air a montré qu'elles étaient transportées par les Alizés de Sud-Est depuis l'Afrique centrale. Un des objectifs de cette section est d'analyser ce transport depuis l'Afrique centrale dans LMDz\_INCA en utilisant notamment des traceurs inertes.

Les observations du D\_F20, présentées dans la section 4.2.1, montrent une différence importante dans les quantités de CO et d'O<sub>3</sub> mesurées dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée entre le 04 août et le 13 août 2006. Les sondages d'O<sub>3</sub> à Cotonou (Bénin) montrent également une variabilité des valeurs mesurées dans la moyenne troposphère entre juin, juillet et août 2006. Ces variabilités des concentrations d'O<sub>3</sub> et de CO sont liées en effet à la variabilité du transport des émissions des feux de biomasse en été 2006. Mari et al. (2008) ont montré que la variabilité de la situation météorologique en Afrique centrale entraîne une variabilité de l'intrusion des émissions feux de biomasse dans l'Afrique de l'Ouest. Garstang et al. (1996) ont caractérisé aussi la variabilité du transport des masses d'air en Afrique centrale. Ils ont montré que ces dernières peuvent avoir des trajectoires différentes suivant la situation météorologique de cette région. Un autre objectif de cette section

### 4.3 Impact du transport à longue distance

est d'étudier cette variabilité de l'intrusion des émissions des feux de biomasse dans l'Afrique de l'Ouest, notamment à l'aide de traceurs inertes. Des tests de sensibilité aux émissions dans LMDz\_INCA ont été réalisés afin de mieux comprendre l'influence des émissions des feux de biomasse sur les résultats du modèle.

Un autre objectif de cette section est d'étudier le transport des émissions des feux de biomasse de l'Afrique centrale dans la haute troposphère. Barret et al. (2008) ont montré que le TEJ peut transporter les émissions de CO asiatiques vers l'Afrique de l'Ouest pendant la saison de la mousson. Cette contribution des émissions asiatiques à la composition chimique de l'Afrique de l'Ouest sera discutée au chapitre 5.

#### 4.3.1 Analyse du transport dans LMDz\_INCA à l'aide des traceurs

Pour une meilleure compréhension du rôle du transport dans LMDz\_INCA pendant l'été 2006, des simulations avec des traceurs inertes ont été réalisées dans le cadre du projet AMMA-MIP (Williams et al., 2010). Ce projet ainsi que les traceurs utilisés sont décrits au chapitre 2. L'utilisation des traceurs inertes est en effet très utile pour comprendre et vérifier le transport dans un modèle. Comme le montre la figure 2.16 au chapitre 2, le traceur AT4 a été émis au sud de l'équateur au dessus de l'Afrique centrale. Ce traceur permet d'analyser le transport à partir de cette région des feux de biomasse. Le traceur AT5 a été émis au dessus de l'océan Atlantique pour analyser le transport dans le flux de mousson vers l'Afrique de l'Ouest (figure 2.16, chapitre 2).

La figure 4.10 représente la distribution du traceur AT4 à 765 hPa et 662 hPa, en moyenne sur août 2006. Le modèle simule le transport de AT4 à partir de l'Afrique centrale vers l'océan Atlantique par les Alizés de Sud-Est. Les plus fortes concentrations de AT4 sont simulées au dessus de l'océan Atlantique entre 15°S et l'équateur. De faibles concentrations du traceur sont simulées au nord de l'équateur ce qui indique que le transport Nord-Ouest vers le Golfe de Guinée est faible dans le modèle. La distribution verticale de AT4, moyenné sur la bande 3.75°W-3.75°E (figure 4.11a), montre aussi le faible transport méridional du traceur dans la moyenne troposphère. La distribution de AT4 est similaire à la distribution de CO simulée (figure 4.9). Le maximum des concentrations est simulé dans la moyenne troposphère entre 10°S et 2°N. Des concentrations plus faibles sont simulées au dessus du Golfe de Guinée. Les distributions de AT4 et de CO, souvent utilisé aussi comme traceur dans les analyses de transport à cause de sa longue durée de vie dans l'atmosphère, montrent ainsi que dans LMDz\_INCA, le transport zonal de masses d'air depuis l'Afrique centrale domine le transport dans la moyenne troposphère dans cette région.



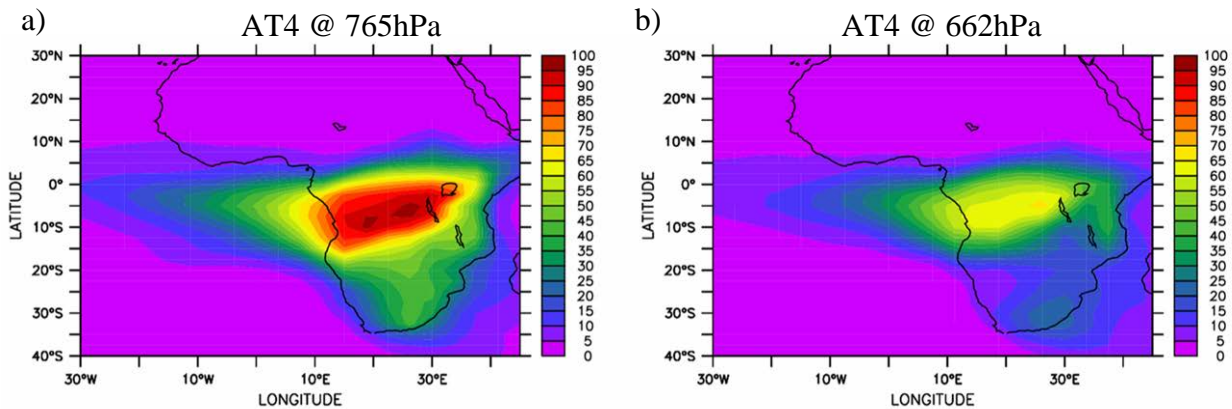


FIG. 4.10 - Distributions du traceur AT4 à 765hPa (a) et 662hPa (b); moyennes sur août 2006.

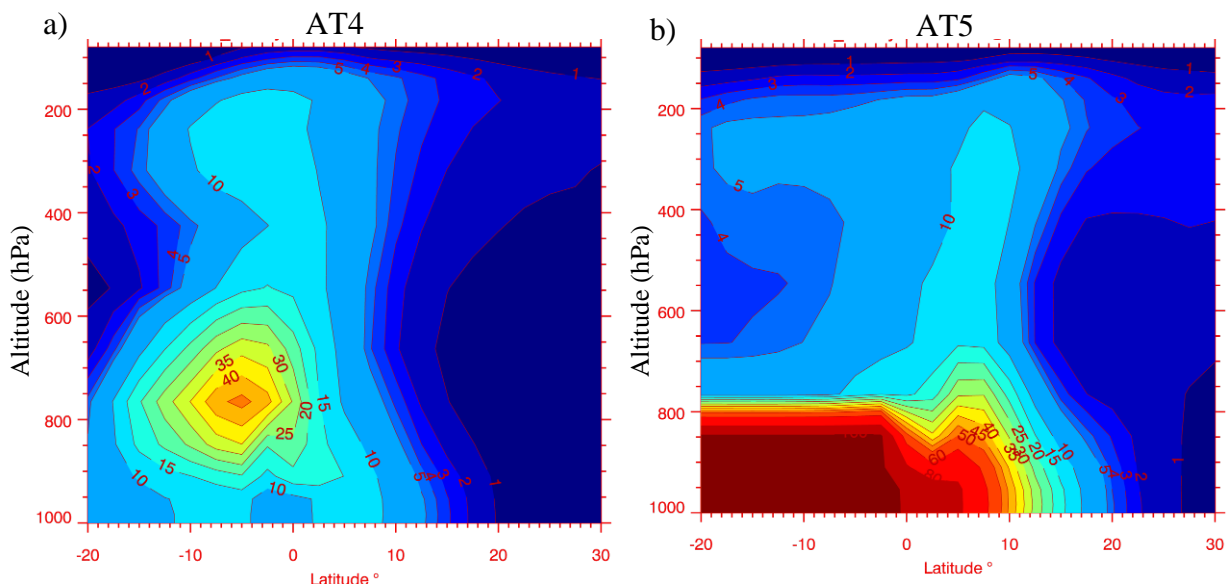


FIG. 4.11- Coupes méridionales des traceurs AT4 (a) et AT5 (b) ; moyennes entre 3.75°W-3.75°E et en août 2006.

Sur la figure 4.11b est représentée la distribution méridionale du traceur AT5. Ce dernier est transporté vers le continent jusqu'au Sahel par le flux de mousson entre la surface et 900 hPa. Il est injecté jusqu'à la moyenne troposphère sous l'influence de la convergence du flux de mousson et du flux d'harmattan au niveau de la ZCIT, aux environs de 10°N. De faibles concentrations de AT5 sont simulées dans la moyenne troposphère (600-750 hPa) au dessus du Golfe de Guinée. La figure 4.12 représente la distribution de AT5 à 847hPa et 765hPa, moyenné en août 2006. De fortes concentrations de AT5 sont transportées à l'Ouest du Golfe de Guinée par les Alizés de Sud-Est et de faibles concentrations sont simulées dans les régions les plus à l'Est des côtes Guinéennes. Ces résultats montrent aussi que l'intensité du transport zonal dans LMDZ\_INCA induit un faible transport vers le Golfe de Guinée dans la moyenne troposphère.

#### 4.3 Impact du transport à longue distance.

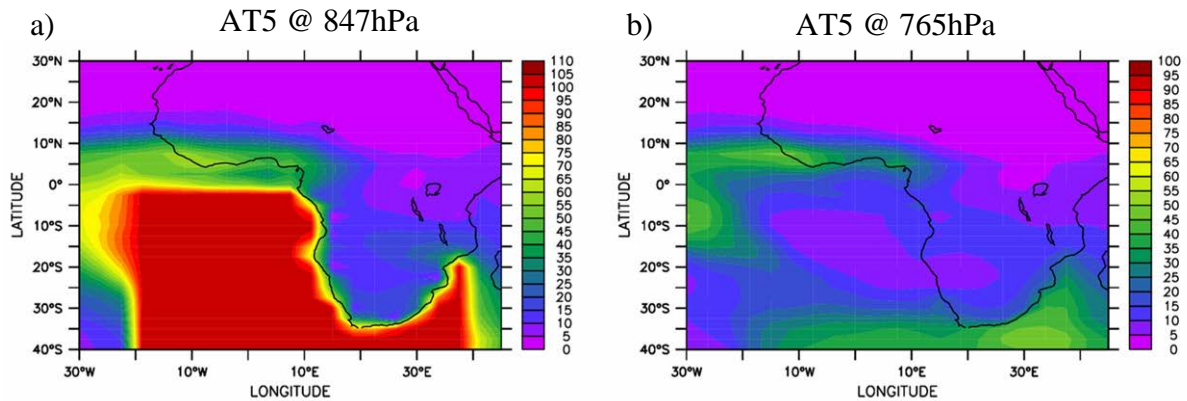


FIG. 4.12 - Distribution du traceur AT5 à 847 hPa(a) et 765hPa(b); moyennes en août 2006.

La comparaison des champs de vents horizontaux calculés par le CEPMMT et LMDz\_INCA à 700hPa et 765hPa respectivement, moyennés entre 10-20 août 2006 (figure 4.13), indiquent que la faible résolution horizontale du modèle peut influencer le transport vers le Golfe de Guinée. Le modèle a été, certes, guidé par les vents du CEPMMT, mais à cause de sa faible résolution il simule un transport vers les côtes Guinéennes moins fort en comparaison au CEPMMT (rectangle rouge). Ce dernier utilise en effet une résolution horizontale de  $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ .

Les autres modèles globaux du projet AMMA-MIP montrent des distributions latitudinales du traceur AT4 et de CO plus ou moins similaires à celles de LMDz\_INCA. Les différences constatées sont principalement dues aux différentes paramétrisations de la convection, du mélange dans la couche limite et des champs météorologiques utilisés pour forcer les modèles. Cependant, ces modèles simulent en général tous le gradient négatif des concentrations de AT4 et de CO entre l'océan Atlantique et le Golfe de Guinée en août 2006 (Annexe A). Ainsi, la faible résolution de LMDz\_INCA en particulier et de ces modèles en général, affaiblit le transport des masses d'airs depuis l'Afrique centrale vers l'Afrique de l'Ouest, et par conséquent, limite la bonne représentation de la distribution de l'ozone et de ses précurseurs dans la moyenne troposphère au dessus de cette région. Cela explique donc la sous-estimation des concentrations élevées d'O<sub>3</sub> et de ses précurseurs observées dans la moyenne troposphère près des côtes Guinéennes. Comme nous l'avons montré dans la section précédente, le modèle simule ces valeurs élevées plus au sud du Golfe de Guinée.

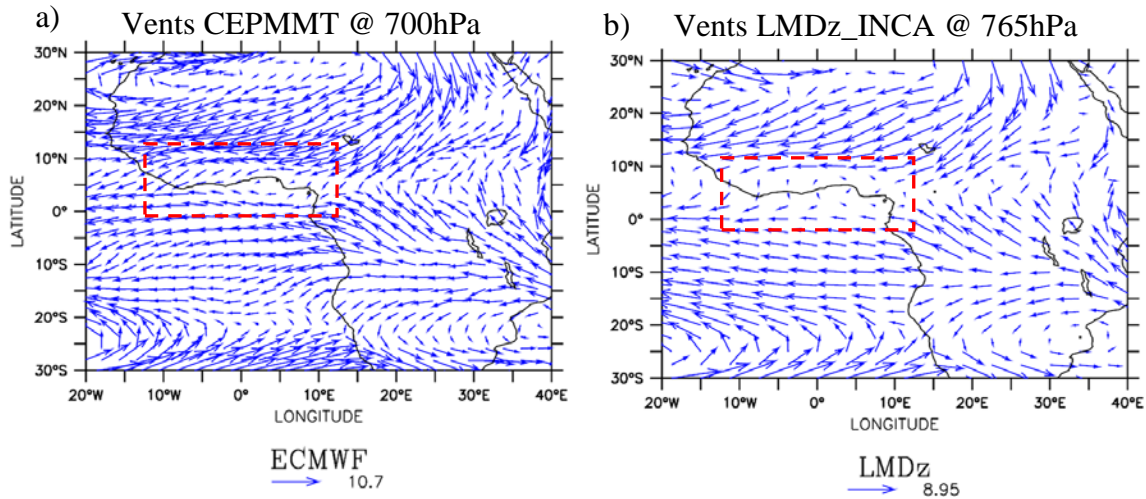


FIG. 4.13 – Vents du CEPMMT (a) et de LMDz\_INCA (b) (en m/s) à 700hPa et 765hPa respectivement. Vents moyennés entre 10-20 août 2006. Le rectangle rouge délimite la région du Golfe de Guinée.

#### 4.3.2 Variabilité du transport des émissions des feux de biomasse

Cette section est consacrée à l'étude de la variabilité du transport des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale qui est due à la variabilité de la situation météorologique pendant la saison de la mousson. Garstang et al. (1996), en analysant le transport des masses d'air dans l'hémisphère sud en Afrique pendant la période août-septembre 1992, ont trouvé quatre trajectoires de base (figure 4.14): un transport direct vers l'Ouest, un transport direct vers l'Est, une circulation anticyclonique avec un transport vers l'Ouest, et une re-circulation anticyclonique. Le transport des émissions des feux de biomasse de l'Afrique centrale vers l'océan Atlantique peut ainsi varier considérablement.

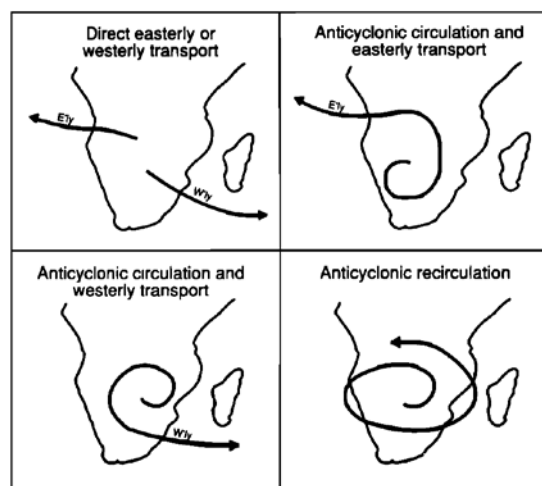


FIG. 4.14 – Différentes trajectoires des masses d'air dans les basses couches en Afrique centrale en août-septembre 1992 (Garstang et al., 1996).

#### 4.3 Impact du transport à longue distance.

Mari et al. (2008) ont caractérisé la variabilité du transport des plumes feux de biomasse pendant la saison de la mousson en 2006, avec l'étude des champs de vent du CEPMMT et des simulations du modèle lagrangien GIRAFE-FLEXPART (Stohl et al., 1998, 2005). L'existence des jets d'Est Africains dans l'hémisphère sud (AEJ-S), mise en évidence par Burpee et al. (1972) et Nicholson and Grist (2003) a été confirmée. La figure 4.15 représente les trois Jets d'Est qui caractérisent la région Africaine en 2006 : L'AEJ-N situé dans l'hémisphère nord à 15°N, le Jet d'Est Africain (TEJ) qui caractérise les hautes altitudes des régions tropicales à environ 200 hPa et L'AEJ-S qui est positionné sur le continent aux environs de 5°S et à l'altitude 700 hPa. C'est ce dernier qui contrôle la variabilité du transport des masses d'air depuis l'Afrique centrale vers l'océan Atlantique et le Golfe de Guinée dans la moyenne troposphère.

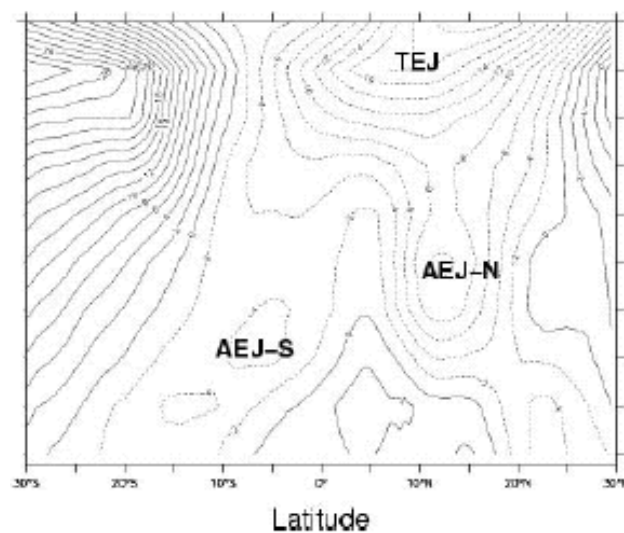


FIG. 4.15 – Vitesse du vent zonal (m/s) du CEPMMT en moyenne entre le 25 juillet et le 31 août 2006 et sur la bande 30°W-10°E (Mari et al., 2008).

Une liaison entre la position et l'activité de l'AEJ-S, et la variabilité de l'intrusion des émissions des feux dans le Golfe de Guinée a été démontrée par Mari et al. (2008). Suivant l'activité de l'AEJ-S en juillet et en août 2006, trois périodes de transport ont été définies : la période active entre le 25 juillet et le 2 août (P1), la période d'inactivité (ou de faible intensité) entre le 3 et le 8 août (P2), et une autre période d'activité entre le 9 et le 31 août (P3). La figure 4.16 représente l'évolution temporelle de la vitesse du vent à 700hPa entre 20°S et 30°N, moyennée entre 30°W et 10°E. Le calcul est effectué à partir des réanalyses du CEPMMT entre le 25 juillet et le 31 août 2006. L'AEJ-N est bien visible aux alentours de 15°N et ne montre pas de variabilité significative. Cependant, l'intensité de l'AEJ-S, visible aux environs de 5°N, montre une variabilité qui correspond aux périodes d'activité et d'inactivité citées plus haut. Les lignes en pointillés montrent la période de faible intensité de l'AEJ-S.

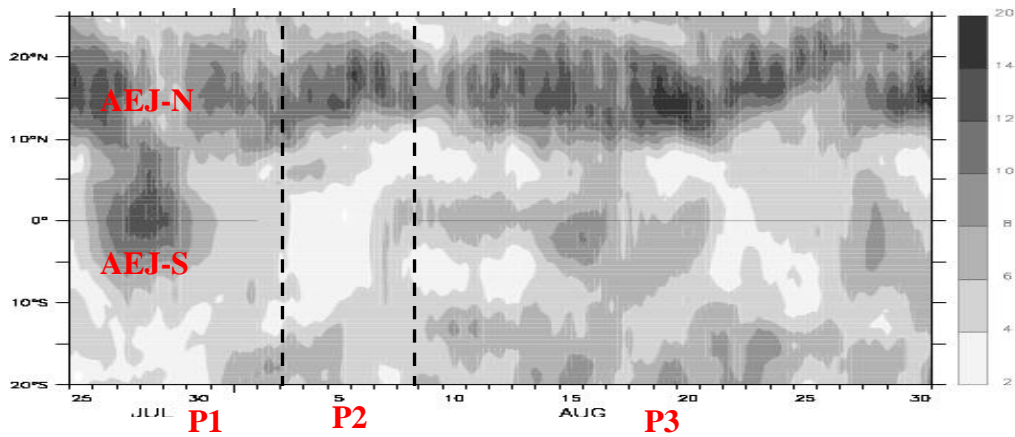


FIG. 4.16 – Evolution temporelle et latitudinale de la vitesse du vent (m/s) à 700 hPa entre le 25 juillet et le 31 août 2006; moyenne entre 30°W et 10°E à partir des réanalyses du CEPMMT (Mari et al., 2008).

La figure 4.17 représente l'équivalent de la figure 4.16 pour la variabilité des concentrations du traceur AT4. Elle montre une variabilité dans le transport de AT4 qui est similaire à la variabilité de la vitesse du vent de la figure 4.16. Le traceur est transporté vers l'océan Atlantique et le Golfe de Guinée pendant les 2 périodes d'activité de l'AEJ-S (P1 et P3), et est faiblement transporté vers ces régions pendant la période P2.

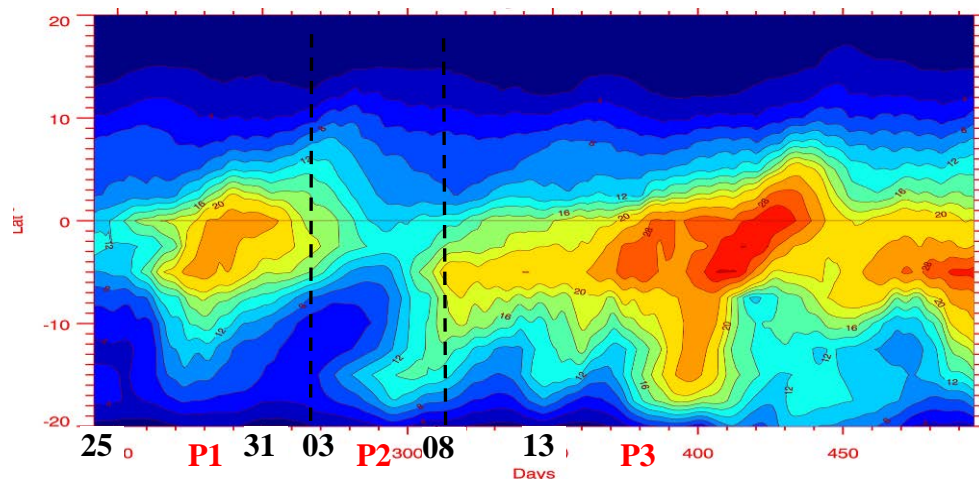


FIG. 4.17 – Evolution temporelle et latitudinale du traceur AT4 à 850 hPa entre le 25 juillet et le 31 août 2006; moyennes sur la bande 30°W-10°E.

La variabilité des concentrations de CO, calculée par KE\_AMMA et représentée sur la figure 4.18, est également en accord avec la variabilité du traceur AT4 (figure 4.17). Des concentrations de CO élevées sont simulées par le modèle au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée pendant les deux périodes d'activité de l'AEJ-S et des concentrations plus faibles sont simulées pendant la période d'inactivité P2.



#### 4.3 Impact du transport à longue distance.

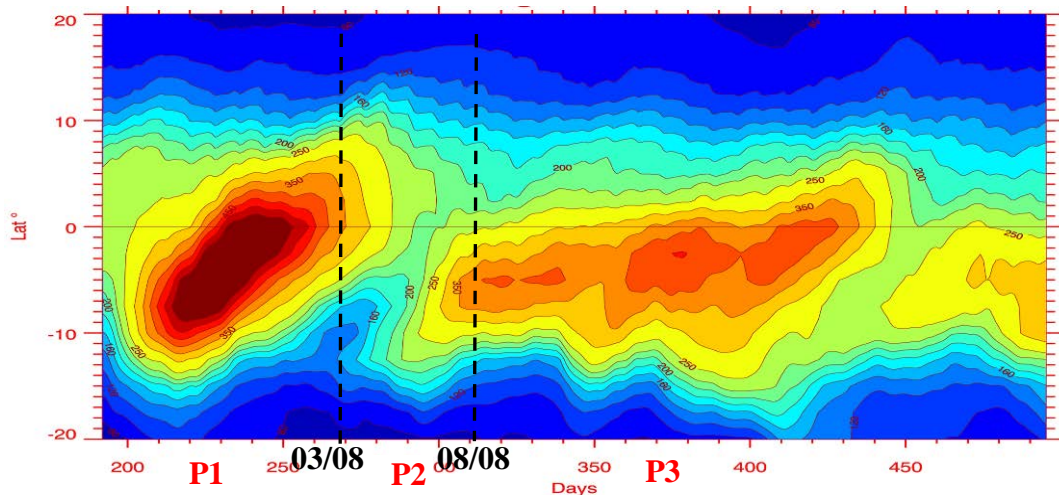


FIG. 4.18 - Evolution temporelle et latitudinale des concentrations de CO (ppbv) à 850 hPa entre le 25 juillet et le 31 août 2006; moyennes sur la bande 30°W-10°E.

La figure 4.19 représente les distributions latitudinales de CO et du traceur AT4 moyennées entre 3.75°W-3.75°E et sur la période d'inactivité (P2) et d'activité (P3) de l'AEJ-S. De fortes concentrations de CO et AT4 sont simulées dans la moyenne troposphère au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée pendant la période P3. Pendant la période P2, le modèle simule une diminution d'environ 30% et 60% des concentrations de CO et de AT4 respectivement, au dessus de ces régions.

Pendant la phase d'inactivité de l'AEJ-S, la propagation vers l'Ouest des vents est très réduite et peut même être quasiment nulle au milieu de cette période. Le traceur AT4 et les émissions des feux de biomasse sont alors confinés sur le continent. La reprise de l'activité de l'AEJ-S à partir du 09 août 2006 induit la propagation des masses d'air vers l'Ouest et donc l'advection du traceur AT4 et des émissions de l'Afrique centrale. Cette variabilité du transport peut expliquer ainsi la variabilité des concentrations de CO et d'O<sub>3</sub> mesurées par le D\_F20 entre le 04 et le 13 août 2006 au dessus du Golfe de Guinée. En effet, alors que le 04 août entre dans la phase d'inactivité de l'AEJ-S, la journée du 13 août se situe dans période d'activité P3. Les émissions confinées sur le continent tout au long de la période P2 sont alors "relâchées" et advectées vers l'océan Atlantique et le Golfe de Guinée dans la moyenne troposphère. Les résultats du modèle montrent, cependant, que l'intrusion du traceur AT4 et de CO au nord de l'équateur est plus importante dans la période P1 et au début de la période P2 que pendant la période P3. La figure 4.16 montre une plus grande intensité de l'AEJ-S pendant la période P1. Les vents du CEPMMT et ceux calculés par le modèle le 29 juillet 2006 (figure 4.20), montrent une intensité du transport vers les côtes Guinéennes. Pendant la période 10-20 août 2006 (figure 4.16), le transport vers l'Afrique de l'Ouest est cependant moins intense. Cette variabilité de l'intensité de l'AEJ-S peut ainsi expliquer la forte sous-estimation des maximums de CO et d'O<sub>3</sub> observés le 13 août au dessus du Golfe de Guinée en comparaison aux sous-estimations constatées le 04 août. Les résultats de cette section montrent également que l'utilisation des traceurs inertes est très utile pour identifier les périodes où la pollution est transportée en dehors des régions d'émissions en Afrique centrale.

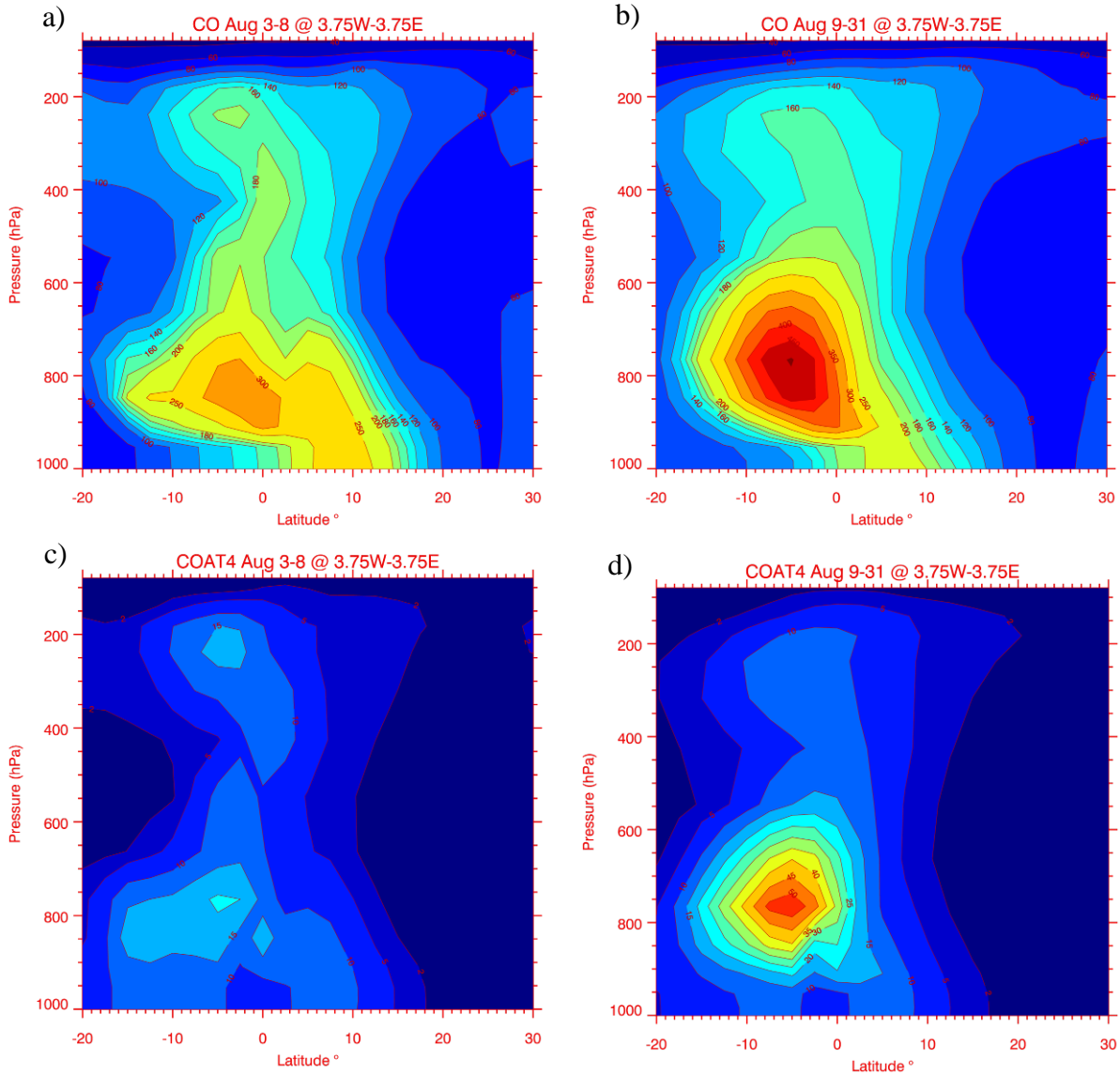


FIG. 4.19 - Distributions méridionales de CO (a, b) et du traceur AT4 (c, d) ; moyennes entre 3-8 août 2006 (a, c), 9-31 août 2006 (b, d) et entre 3.75°W-3.75°E.

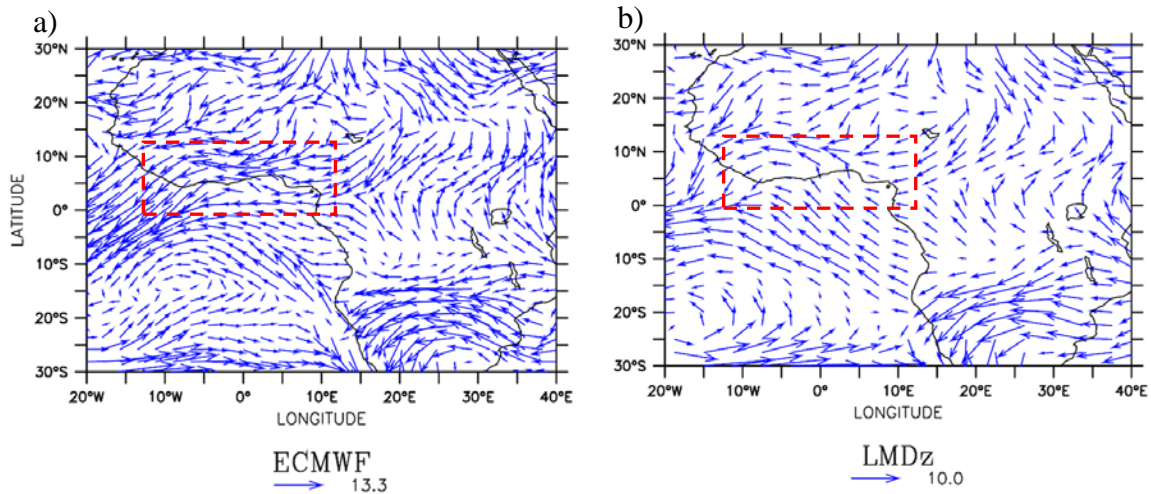


FIG. 4.20 – Vents du CEPMMT (a) et LMDz\_INCA (b) le 29 juillet 2006 à 700hPa et 765hPa respectivement. Le rectangle rouge délimite la région du Golfe de Guinée.



### 4.3.3 Transport des émissions des feux de biomasse dans la haute troposphère

Les données de CO mesurées pendant la campagne AMMA (figure 4.8) montrent que des concentrations élevées ont été mesurées dans la haute troposphère, notamment entre 5°N et 10°N. Comme le montrent aussi les données du D\_F20 du 13 août 2006 (figure 4.2), les valeurs mesurées atteignent près de 200 ppbv aux environs de 200hPa. Des concentrations élevées de CO<sub>2</sub> ont été également mesurées ce jour-là par le M55 dans la haute troposphère (Real et al., 2010). Cependant, les images METEOSAT du 13 août ne montrent pas la présence de systèmes convectifs en Afrique de l'Ouest pouvant expliquer de telles concentrations par le transport depuis les basses couches de la troposphère. Ces fortes concentrations peuvent ainsi être dues au transport à longue distance depuis d'autres régions.

La distribution du traceur AT4 (figure 4.19) montre que ce dernier est transporté vers les hautes altitudes et vers l'Ouest, au dessus de l'océan Atlantique. Real et al. (2010) ont montré aussi à l'aide d'un traceur émis au dessus de l'Afrique centrale dans le modèle régional BOLAM (Malguzzi et al., 2006), que le traceur a été transporté vers la haute troposphère au dessus des côtes Guinéennes. La variabilité du transport des masses d'air depuis l'Afrique centrale, due à la variabilité de l'intensité de l'AEJ-S, peut aussi influencer l'intrusion de ces émissions dans la haute troposphère en Afrique de l'Ouest. En effet, la période d'inactivité de l'AEJ-S favorise le transport de la pollution, retenue sur l'Afrique centrale, vers les régions de la convection au nord de l'équateur. Plusieurs systèmes convectifs ont été en effet observés au dessus de ces régions (Soudan, RDC, République Centre Africaine) pendant la campagne AMMA comme le montre par exemple l'image METEOSAT le 11 août 2006 (figure 4.21b). Les distributions de CO à 865hPa (figure 4.21a) et du traceur AT4 (figure 4.10) calculées par la simulation KE\_AMMA, montrent que le modèle simule un transport de AT4 et de CO au nord de l'Afrique centrale. Ainsi, les émissions des feux de biomasse, une fois transportées au nord de l'équateur, peuvent être redistribuées vers les hautes altitudes par la convection. Le TEJ peut ensuite les transporter vers l'Afrique de l'Ouest.

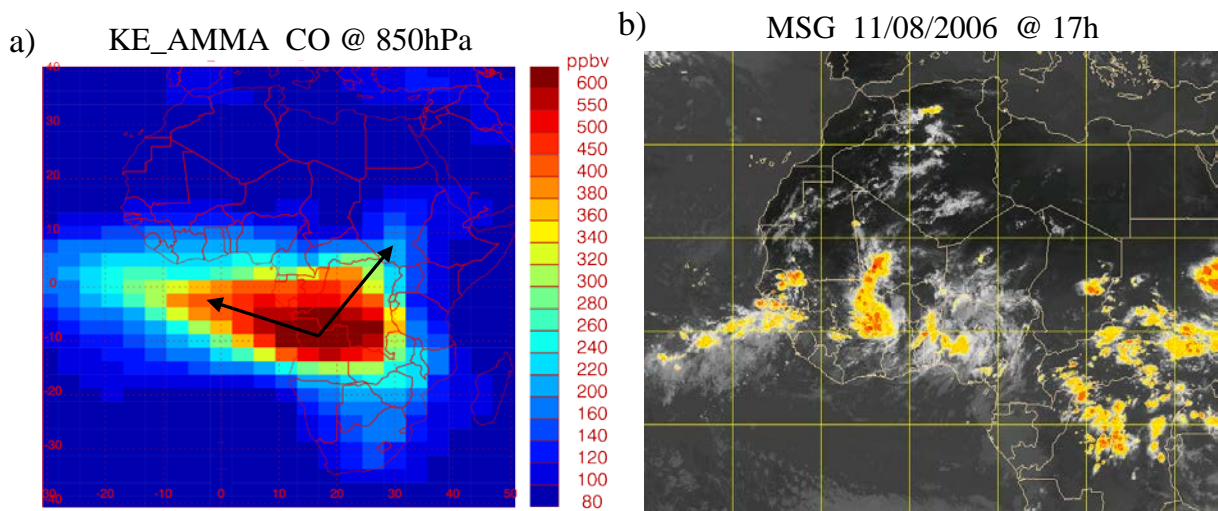


FIG. 4.21 - Distribution de CO (ppbv) à 850 hPa moyennée en août 2006 (a). Image MSG de METEOSAT le 11 août 2006 à 17h (b).

Afin d'étudier le transport depuis l'Afrique de l'Est vers la haute troposphère en Afrique de l'Ouest, un traceur inerte AT6 a été défini juste au nord de l'Afrique centrale sur la région 0°-15°N et 10°E-40°E (figure 4.22a). Comme pour les traceurs définis dans le cadre du programme AMMA-MIP, le traceur AT6 a été émis de la surface à 850 hPa. La distribution zonale de AT6 à 5°N (figure 4.22b) montre un transport vertical du traceur vers la haute troposphère. Le modèle simule aussi un transport du traceur vers l'Afrique de l'Ouest par le TEJ dans la haute troposphère. Cette simulation montre ainsi que le transport à longue distance depuis l'Afrique de l'Est peut influencer la composition chimique de la haute troposphère en Afrique de l'Ouest. Le transport des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale vers le Nord-Est de l'Afrique peut donc induire la redistribution de ces émissions vers la haute troposphère en Afrique de l'Ouest.

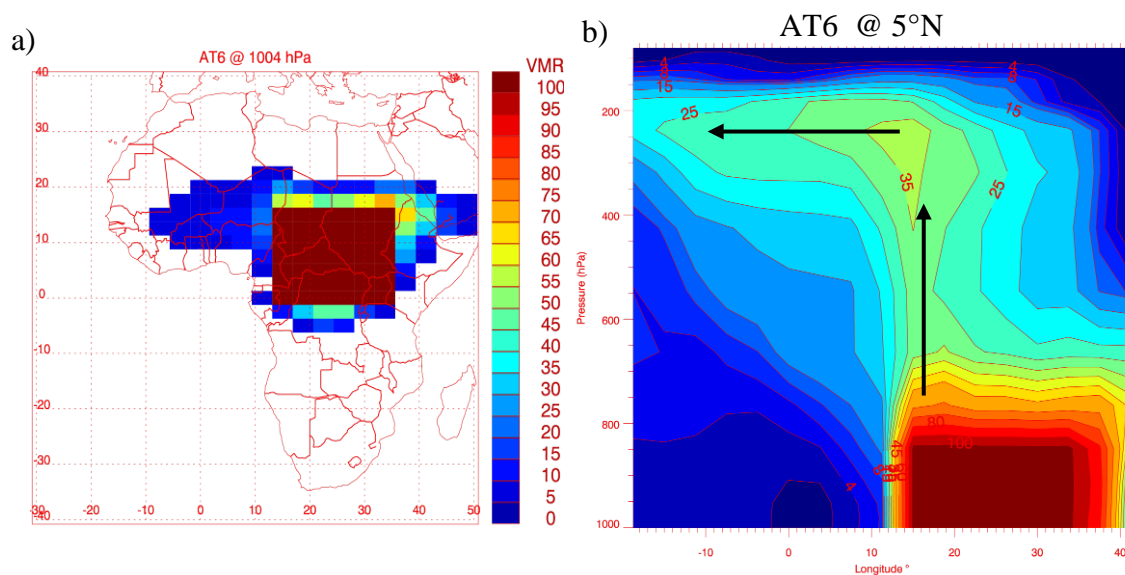


FIG. 4.22 – Distribution du traceur AT6 à 1004 hPa (a) ; Distribution zonale (altitude versus longitude) du traceur AT6 à 5°N (b) moyenné en août 2006.

La figure 4.23a représente les données de CO mesurées par MOZAIC dans la haute troposphère pendant les vols effectués entre Windhoek (Namibie) et l'Europe en juillet et en août 2006 (voir figure 1.12, chapitre1). Les observations MOZAIC montrent une variabilité saisonnière des concentrations de CO au nord et au sud de l'équateur entre juillet et août 2006. Des concentrations élevées de CO ont été observées entre 0°N et 15°N en juillet. A la fin de juillet et en août, c'est au sud de 10°N qu'ont été observées les valeurs élevées de CO. La figure 4.23b représente les résultats de la simulation KE\_AMMA interpolés sur les trajectoires des avions MOZAIC. KE\_AMMA simule également la variabilité saisonnière entre juillet et août des concentrations de CO observées par MOZAIC. Cette simulation surestime cependant les concentrations élevées observées notamment au sud de 5°N.

Les valeurs élevées de CO en août ont été observées et simulées au dessus et au nord de la région des feux de biomasse en Afrique centrale. Le transport convectif des émissions de CO dans cette région peut expliquer ces concentrations élevées de CO dans la haute troposphère. En effet, les images MSG montrent une intensification

#### 4.4 Sensibilité des résultats du modèle aux émissions.

de la convection dans cette région en août 2006. Cette étude montre ainsi la possibilité de la redistribution des émissions de feux de biomasse en Afrique centrale vers la haute troposphère.

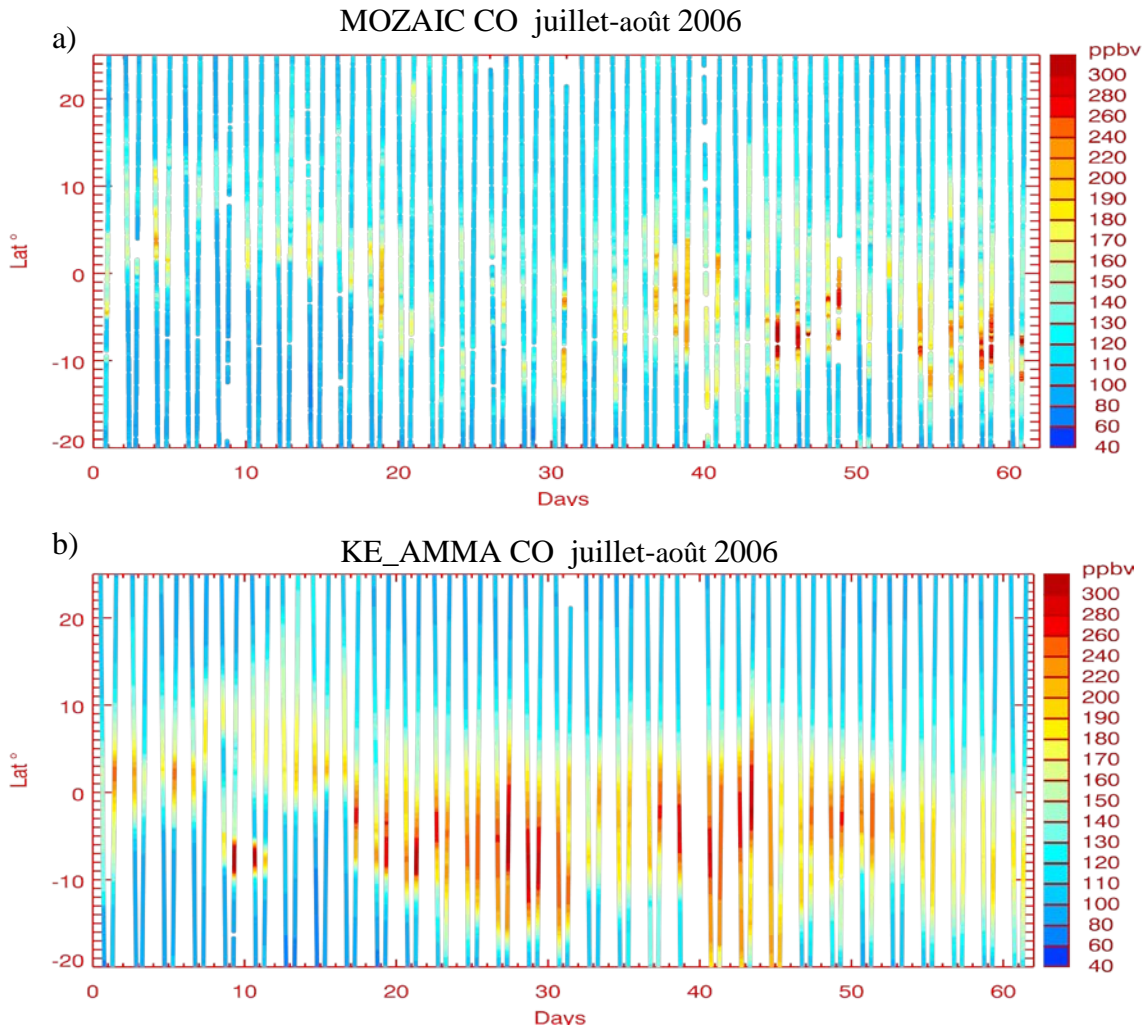


FIG. 4.23 – Concentrations de CO (ppbv) mesurées par MOZAIC (a) et simulées par KE\_AMMA (b) le long des vols entre Windhoek (Namibie) et l'Europe en juillet et août 2006.

La figure 4.24 représente la variabilité temporelle des concentrations de CO et du traceur AT4, simulées entre le 20 juillet et le 20 août 2006 à 7.5°N et à 237hPa. En général, le modèle simule des distributions similaires de CO et du traceur AT4. De fortes concentrations sont simulées vers la fin de juillet et entre le 10 et le 15 août 2006 en Afrique de l'Ouest (20°W-20°E). Les concentrations simulées entre ces deux périodes (01-09 août) sont moins fortes. Ces trois périodes correspondent, à peu près, aux périodes P1, P2 et P3 qui caractérisent l'activité et l'inactivité de l'AEJ-S, discutées dans la section précédente. La figure 4.24 montre une signature claire du transport de CO et du traceur AT4 vers l'Afrique de l'Ouest à partir du Nord-Est de l'Afrique, pendant les périodes P1 et P3 où l'AEJ-S est actif. Real et al. (2010) ont montré également une variabilité presque identique dans le transport de leur traceur, émis en Afrique centrale, vers la haute troposphère en Afrique de l'Ouest. La période d'inactivité de l'AEJ-S induit l'accumulation des émissions et du traceur sur le



continent. A l'arrivée de la période d'activité de l'AEJ-S, les grandes quantités d'émissions des feux de biomasse et du traceur accumulées sont transportées aussi bien vers le Golfe de Guinée que vers le nord-est de l'Afrique centrale. Les émissions et le traceur peuvent être redistribuées ensuite vers l'Afrique de l'Ouest par la convection et le TEJ. Cela explique ainsi les concentrations élevées de CO et AT4 dans la haute troposphère à la fin de juillet et entre le 10-15 août 2006. Ces résultats montrent ainsi que les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale influencent la composition chimique de la haute troposphère en Afrique de l'Ouest.

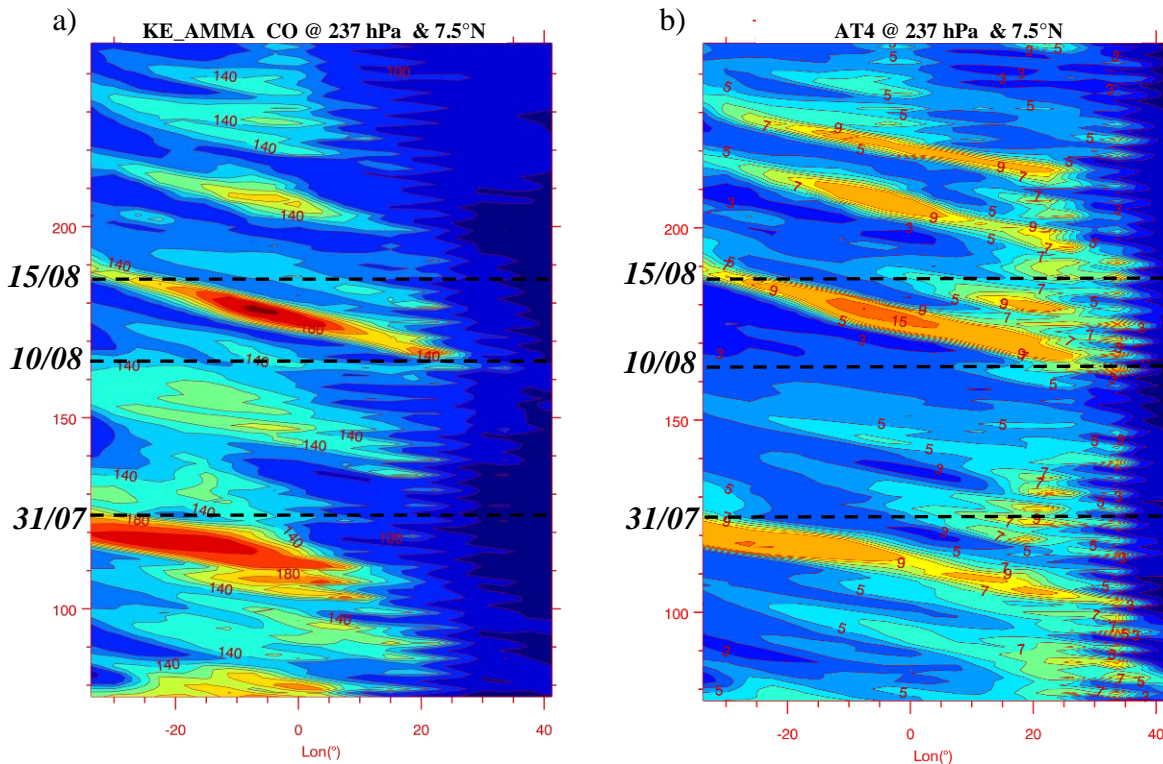


FIG. 4.24 - Hovmoller (temps versus longitude) des concentrations de CO (ppbv) (a) et du traceur AT4 (b) à 237hPa et à 7.5°N entre le 20 juillet et le 20 août 2006.

#### 4.4 Sensibilité des résultats du modèle aux émissions

Plusieurs tests de sensibilité aux émissions ont été réalisés pour mieux étudier l'influence des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sur les résultats de LMDz-INCA. La simulation KE\_AMMA est considérée comme la simulation de référence tout au long de cette section.

##### 4.4.1 Sensibilité à la quantité d'émissions

Le premier test concerne la quantité de CO émise au dessus de la région des feux de biomasse. Ce test 'BB' consiste à réduire de 20% les émissions des feux de biomasse (CO, NO<sub>x</sub>, VOCs) au dessus de cette région. Ce test permet de mieux comprendre l'influence des émissions de cette région sur la composition chimique de la troposphère en Afrique équatoriale et de déterminer les couches de la troposphère les plus influencées par ces émissions.

#### 4.4 Sensibilité des résultats du modèle aux émissions.

Les résultats de ce test interpolés sur les trajectoires des avions pour les vols TLD (figure 4.25) montrent que la réduction des émissions de CO induit une réduction des concentrations simulées au dessus de l’océan Atlantique en comparaison avec les résultats de la simulation KE\_AMMA (figure 4.8). Sur la figure 4.25 est représentée également la distribution latitudinale de CO obtenue avec ce test. En comparaison avec la figure 4.9, on constate également une diminution des concentrations de CO au dessus de l’océan Atlantique et en général dans l’ensemble de la colonne troposphérique dans cette région. Dans la moyenne troposphère, la diminution atteint près de 50 ppbv. Les résultats du test BB complètent ainsi les résultats obtenus avec les deux simulations KE\_AMMA et KE\_WERF. La réduction des émissions en Afrique centrale dans ce dernier test et dans le test BB induit une réduction des concentrations de CO dans la moyenne et la haute troposphère au dessus du Golfe de Guinée. Les résultats du test BB sur l’ozone seront présentés et discutés au chapitre 5.

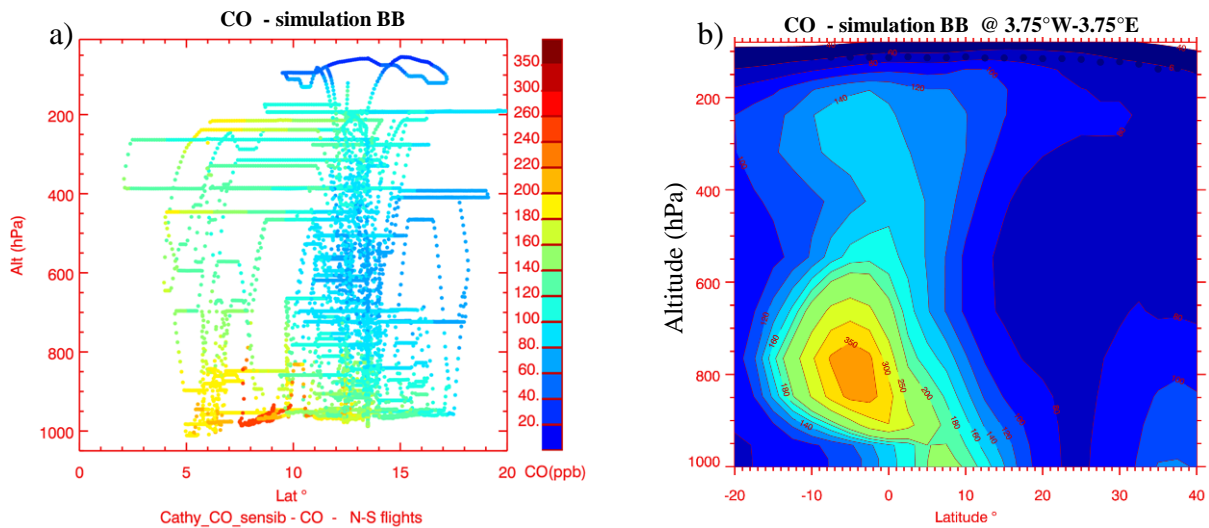


FIG. 4.25 - Concentrations de CO (ppbv) calculées par la simulation ‘BB’ le long des vols TLD (a) ; distribution latitudinale de CO (ppbv) moyennée entre 3.75°W-3.75°E et en août 2006 (b).

#### 4.4.2 Sensibilité à l’injection des émissions

L’injection à haute altitude des émissions des feux de biomasse par des phénomènes de «pyro-convection» est de plus en plus mise en évidence, particulièrement dans des études sur les régions boréales. Cependant, peu d’études ont été effectuées sur l’injection en hauteur des émissions des feux dans les régions tropicales en général et en Afrique en particulier. Aussi, la hauteur d’injection des émissions est encore mal connue. Labonne et al. (2007), en analysant les mesures d’aérosols effectuées par le satellite CALIPSO au dessus de l’Afrique centrale en juillet et août 2006, ont montré que les aérosols émis par les feux de biomasse dans cette région sont mélangés sur toute la hauteur de la couche limite, jusqu’à 3-4.5km d’altitude. Cela montre que, contrairement aux autres types d’émissions (anthropiques, biogéniques...etc) émises principalement à la surface, les émissions des feux de

biomasse en Afrique peuvent être mélangées rapidement dans la couche limite.

Dans LMDz\_INCA, les simulations présentées jusqu'à présent utilisaient des émissions émises dans la première couche du modèle. A cause d'éventuels problèmes de mélanges dans la couche limite ou dans la hauteur de celle-ci, les émissions peuvent être moins diffusées vers la troposphère. Cela peut affecter ainsi la distribution de plusieurs espèces chimiques, dont l'ozone, dans la troposphère. Le but des tests de sensibilité présentés dans cette section est de vérifier si les sous-estimations des concentrations de CO, d'O<sub>3</sub> et de NO<sub>x</sub> observées dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée ne proviennent pas d'un éventuel problème de diffusion dans la couche limite du modèle. Ces simulations 'INJ\_BB' consistent à injecter une partie des émissions de CO en Afrique centrale dans d'autres niveaux verticaux du modèle qu'à la surface. Plusieurs hauteurs d'injection ont été testées : 1km, 3km et 4 km. Dans chaque test, 50% des émissions de CO en Afrique centrale ont été émises à la surface et 50% ont été réparties jusqu'à l'altitude d'injection choisie.

La figure 4.26 montre des différences absolues entre les distributions méridionales de CO à 0° longitude simulées par INJ\_BB et KE\_AMMA (INJ\_BB-KE\_AMMA). Etant donné la variabilité du transport des plumes feux de biomasse discutée dans les sections précédentes, il est difficile de voir des différences entre les deux simulations sur une moyenne mensuelle. Ainsi, les figures 4.26 sont représentatives de la journée du 13 août 2006, située dans la période d'activité de l'AEJ-S et donc d'intense transport des émissions depuis l'Afrique centrale vers l'Ouest.

L'injection des émissions de CO à 1km d'altitude induit une diminution de 5 à 15ppbv des concentrations dans la moyenne troposphère entre 7°S et 2°N, et à une augmentation de 8 ppbv au plus entre 20°S et 8°S. L'injection à 3km montre une diminution d'environ 10 ppbv des concentrations de CO au dessus du Golfe de Guinée dans la haute troposphère, entre 200 hPa et 400hPa, et dans la basse troposphère au dessous de 800 hPa. Dans la moyenne troposphère, entre 600 et 800 hPa, le modèle simule une augmentation des concentrations qui peut atteindre 30 ppbv au dessus de l'océan atlantique. L'injection à 4km montre une diminution (respectivement augmentation) jusqu'à 30 ppbv des concentrations de CO aux mêmes niveaux d'altitude et sur les mêmes bandes de latitude que l'injection à 3km.

#### 4.4 Sensibilité des résultats du modèle aux émissions.

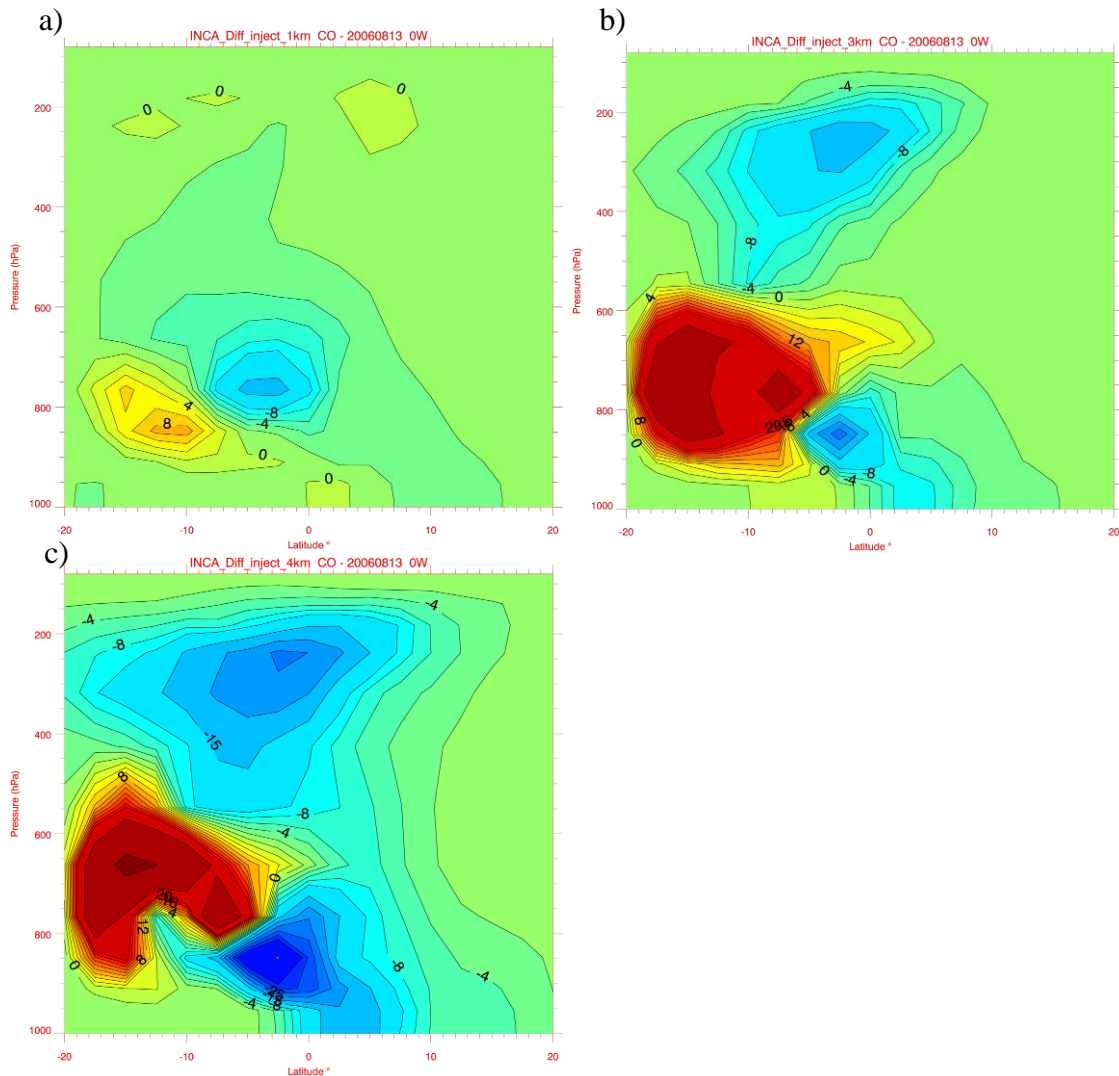


FIG. 4.26 – Distributions méridionales de CO (ppbv) à 0° longitude le 13 août 2006, en différences absolues entre les simulations INJ\_BB et KE\_AMMA (INJ\_BB-KE\_AMMA); tests d'injection à 1km (a), 3km (b) et 4km (c).

Les trois tests présentés dans cette section montrent que le modèle est plus sensible à l'injection des émissions à 3km et à 4km qu'à une injection à 1km. L'injection en hauteur des émissions à ces altitudes induit une diminution des concentrations de CO dans la haute et la basse troposphère au dessus du Golfe de Guinée. Dans la moyenne troposphère (600-800 hPa), les tests montrent une augmentation des concentrations plus significative au dessus de l'océan Atlantique. Au dessus du Golfe de Guinée, l'augmentation des concentrations de CO dans la moyenne troposphère est plus significative dans le test d'injection des émissions à 3km d'altitude. Le modèle simule une augmentation de 2-6 ppbv de CO dans ce test. Ces tests montrent ainsi que LMDz\_INCA est sensible à l'injection en hauteur des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale. L'injection à 3km de ces émissions et une amélioration de la résolution horizontale du modèle (avec un zoom sur l'Afrique par exemple) pourrait améliorer les résultats du modèle au dessus du Golfe de Guinée.



La figure 4.27 représente la variabilité latitudinale (20°S-20°N) et temporelle (25 juillet - 31 août 2006) des concentrations d'O<sub>3</sub> à 850 hPa moyennées entre 30°W et 10°E, en différence absolue entre les résultats du test d'injection à 3km d'altitude et les résultats de KE\_AMMA (INJ\_BB-KE\_AMMA). Cette figure montre ainsi l'influence de l'injection à 3km d'altitude des émissions en Afrique centrale sur l'ozone dans la bande de longitudes 30°W-10°E. Les résultats montrent une augmentation jusqu'à 10 ppbv d'O<sub>3</sub> au dessus de l'océan Atlantique dans le test INJ\_BB. Une augmentation d'O<sub>3</sub> d'environ 3-6 ppbv est simulée aussi au dessus du Golfe de Guinée. L'influence de l'injection des émissions dans ce test s'étend jusqu'à l'Afrique de l'Ouest où une augmentation d'O<sub>3</sub> de 1-2 ppbv est simulée. Cette étude montre ainsi que l'injection des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale améliore les résultats du modèle au dessus du Golfe de Guinée en comparaison aux données d'O<sub>3</sub> mesurées pendant la campagne AMMA dans cette région.

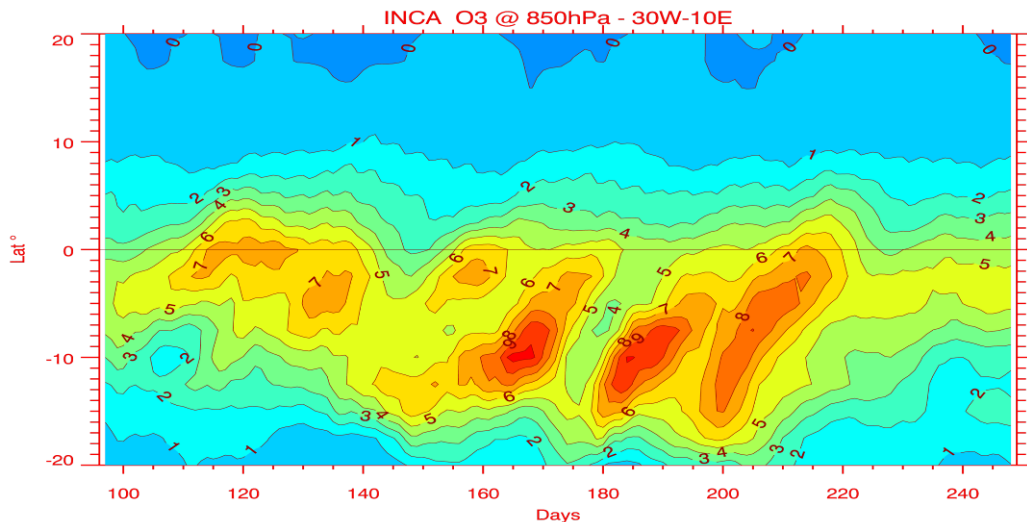


FIG. 4.27 - Evolution temporelle et latitudinale des concentrations d'O<sub>3</sub> (ppbv) à 850 hPa entre le 25 juillet et le 31 août 2006; moyennes sur la bande 30°W-10°E.

#### 4.4.3 Sensibilité à la localisation des émissions

L'objectif du test 'DIST\_BB' présenté dans cette section, est d'étudier l'influence de la distribution spatiale des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sur les résultats du modèle. Ce test permet de voir si en déplaçant ces émissions un peu plus vers le nord, le modèle arriverait à mieux reproduire les concentrations élevées de CO observées au dessus du Golfe de Guinée, au même niveau d'altitude et de latitude. Le désaccord entre les résultats de KE\_AMMA et les observations, du à la faible résolution du modèle et éventuellement à la non injection en hauteur des émissions des feux de biomasse sont les principales motivations pour effectuer ce test. Le test DIST\_BB consiste à déplacer les émissions en Afrique centrale de 3° vers le nord. Les émissions ont été de plus injectées jusqu'à 3km d'altitude.

#### 4.4 Sensibilité des résultats du modèle aux émissions.

La figure 4.28a représente les concentrations de CO simulées par ce test et interpolées sur les trajectoires des avions pour les vols TLD. Le modèle simule une diminution des concentrations dans la basse troposphère qui peut atteindre plus de 30ppbv au dessus du Golfe de Guinée. Dans la haute troposphère, le modèle simule par contre une augmentation d'environ 20 ppbv des concentrations de CO. La figure 4.28b représente plus clairement l'influence du test DIST\_BB sur la distribution latitudinale de CO. Le modèle simule jusqu'à 200ppbv de réduction des concentrations de CO dans la moyenne troposphère au dessus de l'océan Atlantique. La réduction atteint 60 ppbv au dessus du Golfe de Guinée. Dans la haute troposphère, le modèle simule une augmentation d'environ 50 ppbv de CO. Ce test montre ainsi que le désaccord entre le modèle et les observations au dessus du Golfe de Guinée n'est pas du à une mauvaise distribution spatiale des émissions utilisées. Ce test confirme cependant l'influence de la convection au nord de l'Afrique centrale sur la composition chimique de la haute troposphère au dessus du Golfe de Guinée. L'augmentation de CO simulée témoigne en effet de la redistribution des émissions au nord de l'Afrique centrale vers le Golfe de Guinée par la convection et le TEJ.

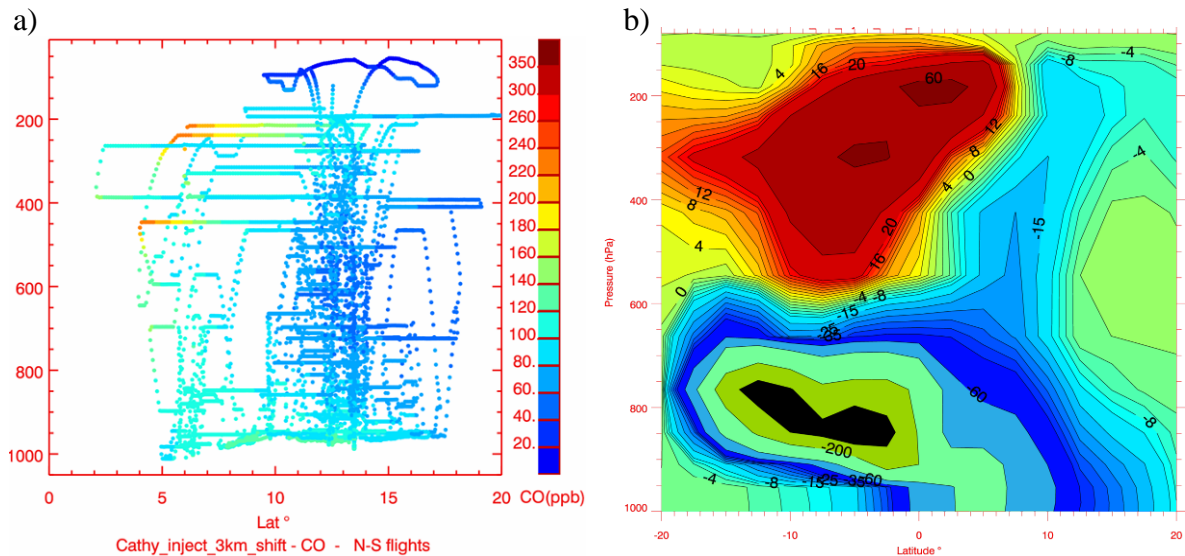


FIG. 4.28 - Concentrations de CO (ppbv) dans la simulation DIST\_BB le long des vols TLD (a). Distribution méridionale de CO (ppbv) à 0° longitude en différences absolues entre les simulations DIST\_BB et KE\_AMMA (DIST\_BB et KE\_AMMA) (b) .

#### 4.5 Conclusion

L'objectif de ce chapitre était d'analyser l'impact des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sur la composition chimique de la troposphère en Afrique de l'Ouest. L'analyse des données de la campagne AMMA a montré que le transport de ces émissions par les alizés de Sud-Est explique les quantités élevées des espèces chimiques mesurées (e.g. CO, O<sub>3</sub>, NO, NO<sub>y</sub>) dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée. Les simulations de LMDz\_INCA montrent que le modèle reproduit également ces fortes concentrations dans la moyenne troposphère, mais plus au sud du Golfe de Guinée. Cela à cause de l'intensité du transport zonal dans le

modèle d'une part et de la faible intensité du transport vers l'Afrique de l'Ouest d'autre part. Le modèle simule la variabilité de l'intrusion des émissions des feux de biomasse vers l'océan Atlantique, définie par Mari et al. (2008) pour la période du 25 juillet au 31 août 2006. Cependant, le modèle simule une faible intrusion de ces émissions au nord de l'équateur à partir de 08 août 2006. Cela explique également la sous-estimation des fortes concentrations mesurées près des côtes Guinéennes. Les données MOZAIC et les résultats du modèle montrent que les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale influencent aussi la composition chimique de la haute troposphère. Les résultats de LMDz\_INCA montrent aussi que ces émissions sont redistribuées jusque dans la haute troposphère en Afrique de l'Ouest. Ces émissions sont en effet transportées au Nord-Est de l'Afrique équatoriale où la convection et le TEJ contribuent à leur redistribution vers l'Afrique de l'Ouest. L'influence de ces émissions sur l'ozone en Afrique équatoriale sera discutée dans le prochain chapitre.

Afin de tester les performances de LMDz\_INCA, plusieurs simulations avec notamment des traceurs inertes et des cadastres d'émissions différents ont été réalisées. Les résultats ont montré que l'utilisation des traceurs inertes est très utile pour analyser le transport des émissions dans le modèle à partir d'une région comme l'Afrique centrale. Les résultats du modèle sont sensibles aux émissions utilisées. Ainsi, la simulation KE\_AMMA donne de meilleurs résultats en Afrique de l'Ouest et au dessus du Golfe de Guinée. D'éventuels problèmes de mélange dans la couche limite du modèle, peuvent induire une faible diffusion verticale des émissions de surface et, par conséquent, un faible transport de ces émissions dans la moyenne troposphère par les Alizés de Sud-Est. Des tests de sensibilité à l'injection en hauteur des émissions des feux de biomasse ont été réalisés. Les résultats de ces tests ont montré qu'en injectant les émissions jusqu'à 3km d'altitude, le modèle simule une augmentation de CO et d'O<sub>3</sub> dans la moyenne troposphère au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée. L'amélioration de la résolution horizontale du modèle avec notamment un zoom sur l'Afrique équatoriale, et l'injection à 3km d'altitude des émissions des feux de biomasse pourraient ainsi améliorer les performances du modèle. Une nouvelle paramétrisation de la couche limite du modèle est actuellement en cours de développement et a pour objectif d'améliorer le mélange et la diffusion dans la couche limite dans LMDz\_INCA (Rio and Hourdin, 2008). Cela pourrait également améliorer les résultats du modèle.

Le transport à longue distance depuis d'autres régions comme l'Asie du Sud-Est influence également la composition chimique de l'atmosphère en Afrique de l'Ouest (Barret et al., 2008). L'influence des émissions de cette région sur l'ozone en Afrique équatoriale sera discutée au chapitre 5.

## Chapitre 5

# Bilan régional de l’ozone en Afrique équatoriale pendant la saison de la mousson.

### 5.1 Introduction

L’objectif de ce chapitre est d’étudier les différentes contributions des émissions africaines et asiatiques au bilan régional de l’ozone en Afrique équatoriale pendant la saison de la mousson. Cette étude a pour objectif également d’étudier l’impact du transport de ces émissions sur l’ozone en dehors du continent Africain, notamment au dessus de l’océan Atlantique. L’analyse effectuée au chapitre 3 sur les données de la campagne AMMA et les simulations de LMDz\_INCA, ont montré que le transport convectif de masses d’air polluées depuis les basses couches au dessus de l’Afrique influence considérablement la distribution verticale de plusieurs espèces chimiques (e.g. CO, NO<sub>x</sub>, CH<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) qui jouent un rôle important dans la chimie de l’ozone et sur la capacité oxydante de la troposphère. Cette étude a montré ainsi que les émissions biogéniques (e.g. isoprène), les différentes émissions anthropiques (e.g. CO, NO<sub>x</sub>) ainsi que les émissions de NO<sub>x</sub> par les sols, peuvent être transportées jusque dans les plus hautes altitudes par la convection. L’étude a montré également que les importantes émissions de NO<sub>x</sub> par les éclairs (LiNO<sub>x</sub>) dans la haute troposphère pendant la saison de la mousson, peuvent être redistribuées vers les basses couches par la subsidence de masses d’air due aussi au mouvement convectif. Cette redistribution des émissions par la convection, associée à la redistribution de masses d’air pauvres ou riches en ozone peut ainsi modifier considérablement le budget régional de l’ozone.

Dans la basse et la moyenne troposphère, l’influence des émissions en Afrique de l’Ouest sur l’ozone est plutôt significative au niveau local à cause du transport vertical convectif d’une part et de l’advection dans les basses couches d’autre part. Dans la haute troposphère, l’étude effectuée au chapitre 3 montre que le transport à grande distance (TEJ, branches de retour des cellules de Hadley) influence la composition chimique et le budget de l’ozone au niveau local, au dessus de l’Afrique de l’Ouest,

mais aussi au niveau régional. Cette étude a montré ainsi la tendance négative de la convection aux concentrations de l’ozone dans les hautes altitudes au dessus de l’Afrique de l’Ouest et la tendance positive, due au transport à grande distance, en dehors des régions de la convection notamment au dessus de l’océan Atlantique. Barret et al. (2008) ont montré que le transport à longue distance des émissions asiatiques peut également influencer la composition chimique de la haute troposphère en Afrique de l’Ouest. L’influence de ces émissions sur le bilan régional de l’ozone en Afrique sera analysée dans ce chapitre.

L’étude effectuée au chapitre 4 montre que la région des feux de biomasse en Afrique centrale est une source importante de précurseurs de l’ozone pendant la saison de la mousson. Cette région influence considérablement la composition chimique de la basse et moyenne troposphère au dessus de l’océan Atlantique et du Golfe de Guinée. Les émissions des feux de biomasse peuvent être également transportées dans les basses couches de l’atmosphère depuis l’Afrique centrale vers les régions d’intense activité convective plus au nord. Ces émissions peuvent être redistribuées ensuite vers les plus hautes altitudes par la convection et vers l’Afrique de l’Ouest par le transport à grande distance. Les émissions des feux de biomasse influencent donc la composition chimique de l’atmosphère au niveau local mais aussi au niveau régional.

Afin de tenir compte de cette dimension régionale de l’influence des émissions africaines sur la composition chimique de l’atmosphère, une étude de leur influence sur l’ozone sur un domaine plus large que l’Afrique de l’Ouest est donc plus appropriée. La figure 5.1 montre le domaine D1 (50°W-40°E ; 35°S-30°N) considéré dans cette analyse.

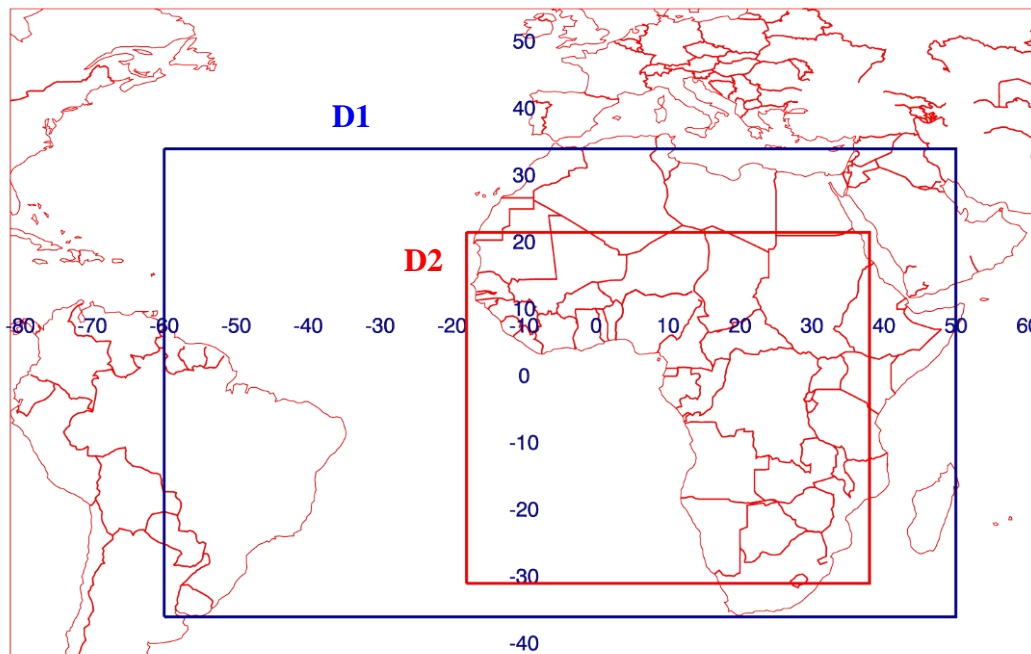


FIG. 5.1 – Domaine D1 (rectangle bleu) considéré pour étudier l’influence des émissions africaines sur l’ozone troposphérique ; Domaine D2 (rectangle rouge) où les émissions ont été réduites de 20%.

## 5.2 Contribution des LiNO<sub>x</sub>.

Afin d'étudier la contribution des émissions africaines au bilan régional de l'ozone dans le domaine D1, des tests de sensibilité aux quantités d'émissions ont été effectués. Le principe est de réduire dans chaque test de 20% la quantité d'une catégorie d'émissions (émissions biogéniques, anthropiques, NO<sub>x</sub> émis par les sols, LiNO<sub>x</sub>, émissions des feux de biomasse). La réduction de 20% est justifiée par le fait que les processus chimiques dans l'atmosphère ne sont pas linéaires. La suppression complète des émissions d'une espèce chimique peut affecter la capacité oxydante de la troposphère ainsi que la durée de vie d'autres espèces chimiques. Par conséquent, il est difficile d'estimer l'influence d'une espèce chimique en supprimant complètement ses sources. Les réductions de 20% ont été effectuées sur le domaine D2 (20°W-38°E ; 30°S-20°N). Ce domaine inclut à la fois la région d'émissions biogéniques, des NO<sub>x</sub> par les sols, des LiNO<sub>x</sub> ainsi que la région des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale.

## 5.2 Contribution des LiNO<sub>x</sub>

Le test LiNO<sub>x</sub>\_off, dont les résultats sont présentés au chapitre 3, a montré que dans LMDz\_INCA ce sont les LiNO<sub>x</sub> qui contribuent le plus aux concentrations de NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère, entre 400 hPa et 150 hPa, en Afrique pendant la saison de la mousson. Cette simulation a montré également que les LiNO<sub>x</sub> apportent une contribution significative aux concentrations de l'ozone notamment dans la haute et moyenne troposphère. La figure 5.2 montre les résultats du test SLNO<sub>x</sub>, où les émissions de NO<sub>x</sub> par les éclairs en Afrique ont été réduites de 20%. Le tableau 5.1 montre les quantités de LiNO<sub>x</sub> émises dans le domaine D2 utilisées par les simulations KE\_AMMA et SLNO<sub>x</sub>.

Espèce	KE_AMMA	SLNO <sub>x</sub> (-20% KE_AMMA)	Différence
LiNO <sub>x</sub> [Tg (N)]	1.17	0.94	0.23

TAB. 5.1 – Quantités totales de LiNO<sub>x</sub> en JJA dans le domaine D2, utilisées par les simulations KE\_AMMA et SLNO<sub>x</sub>.

La figure 5.2 représente la distribution zonale et méridionale de l'ozone dans le domaine D1 moyennées entre juin et août (JJA) 2006, en différences absolues ( $\Delta O_3$ ) entre les simulations KE\_AMMA et SLNO<sub>x</sub>. Les résultats montrent qu'une réduction de 20% des LiNO<sub>x</sub> dans le test SLNO<sub>x</sub> induit une réduction de 1-2 ppbv des concentrations de l'ozone entre 400 hPa et 150 hPa. Cette réduction se produit entre 20°S et 30°N et entre 30°W et 40°E. La moyenne troposphère est également affectée par une diminution de plus de 1 ppbv d'ozone. L'influence de la réduction des LiNO<sub>x</sub> sur les concentrations d'O<sub>3</sub> dans la basse troposphère est peu significative (réduction de 0.2-0.4 ppbv) en comparaison à la réduction simulée dans la haute et la moyenne troposphère. Le test LiNO<sub>x</sub>\_off a montré que la suppression complète des LiNO<sub>x</sub> induit une diminution de 5-10% (1-2 ppbv) des concentrations de l'ozone dans les basses couches au dessus de l'Afrique de l'Ouest (section 3.5). Ces résultats sont en accord avec ceux de Saunois et al. (2009) qui ont calculé, à l'aide du modèle bidimensionnel Méso-NH (Peyrillé et al., 2007), une réduction d'environ 2 ppbv des

concentrations de l'ozone dans la couche limite en Afrique de l'Ouest en supprimant les LiNOx dans leur modèle.

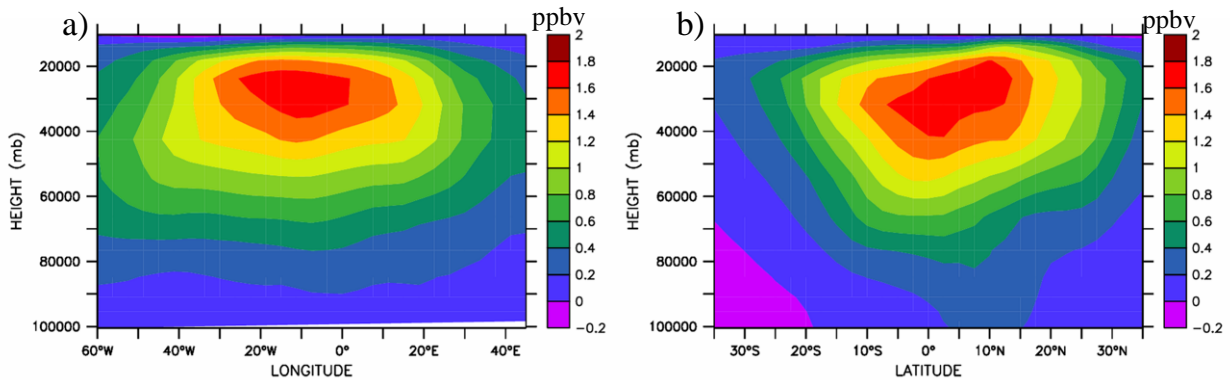


FIG. 5.2 – Moyenne zonale (a) et méridionale (b) en JJA et sur le domaine D1 du  $\Delta O_3$  (ppbv) calculé avec les simulations KE\_AMMA et SLNOx (KE\_AMMA – SLNOx). Altitude (HEIGHT en Pa).

La figure 5.3 montre le  $\Delta O_3$  calculé entre les concentrations de l'ozone simulées par KE\_AMMA et SLNOx à 545 hPa et à 240 hPa, moyennées en JJA. Cette figure montre plus clairement l'influence des LiNOx sur l'ozone dans la moyenne et la haute troposphère dans le domaine D1. Dans la moyenne troposphère à 545 hPa, l'influence s'étend de 10°S à 20°N et jusqu'à l'océan Atlantique où on observe un  $\Delta O_3$  de plus de 1 ppbv. A 240 hPa, la diminution des concentrations de l'ozone dans la simulation SLNOx atteint près de 3ppbv au dessus des côtes ouest de l'Afrique. Le modèle simule également une diminution de 1-2 ppbv d' $O_3$  entre 20°S et 30°N au dessus de l'océan Atlantique, au Golfe de Guinée et au Sahel. L'influence s'étend même jusqu'à l'Afrique centrale où le modèle simule un  $\Delta O_3$  de plus de 1ppbv. Cette grande extension spatiale de l'influence des LiNOx sur l'ozone dans le modèle peut s'expliquer par la redistribution des masses d'air au dessus de l'Afrique de l'Ouest, par les différents processus de transport qui caractérisent cette région. La convection conduit au mélange des masses d'air dans la troposphère en Afrique de l'Ouest. L'AEJ transporte des masses d'air dans la moyenne troposphère jusqu'à l'océan Atlantique. Le TEJ exporte les masses d'air dans la haute troposphère. Enfin, les cellules de Hadley transportent des masses d'air en direction des pôles dans la haute troposphère et les subsidences dans les branches de retour de ces cellules peuvent transporter aussi les masses d'air jusqu'à la moyenne troposphère dans les régions sub-tropicales. La diminution de l'ozone au dessus de l'Afrique de l'Ouest dans la simulation SLNOx se répercute donc sur d'autres régions influencées par les processus cités ci-dessus.

La simulation LiNOx\_off a montré que la suppression des LiNOx dans le modèle induit une diminution de 05-15% d' $O_3$  (environ 5-10 ppbv) dans la moyenne troposphère et de 20-35% (environ 10-15 ppbv) dans la haute troposphère en Afrique de l'Ouest et au dessus de l'océan Atlantique. Les résultats de LMDz\_INCA sont en accord avec les résultats de Sauvage et al. (2007b) qui ont montré que dans le modèle GEOS-Chem (Bey et al., 2001) les LiNOx expliquent 30% de l'ozone produit au dessus de l'océan Atlantique pendant la saison de la mousson. Les résultats de LMDz\_INCA sont aussi en accord avec ceux de Saunois et al. (2008) qui ont montré une augmentation des concentrations de l'ozone dans la moyenne et la haute



## 5.2 Contribution des LiNOx.

troposphère en Afrique de l'Ouest quand les LiNOx sont considérés dans la version bidimensionnel du modèle MésO-NH. Cependant, le  $\Delta O_3$  calculé par LMDz\_INCA est inférieur à celui calculé par Saunois et al. (2008) qui est de 20 ppbv dans la moyenne et la haute troposphère.

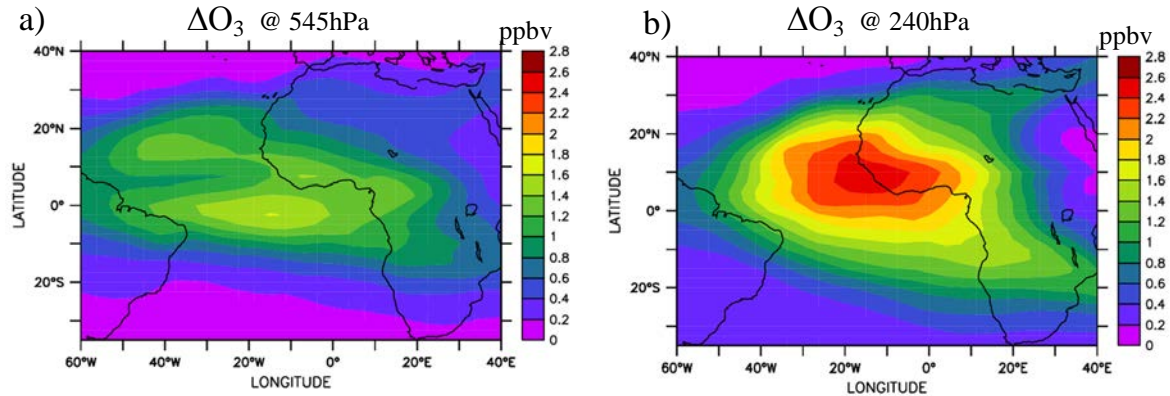


FIG. 5.3 – Cartes de  $\Delta O_3$  (ppbv) à 545 hPa (a) et 240 hPa (b) calculées (KE\_AMMA – SLNOx) ; moyennes sur JJA.

La comparaison des résultats de LMDz\_INCA et des observations AMMA effectuée au chapitre 3, a montré que le modèle sous-estime la contribution des LiNOx aux concentrations de  $NO_x$  dans la haute troposphère en Afrique. Cette comparaison aux données AMMA a montré également qu'il faudra augmenter de plus de 50% les LiNOx dans LMDz\_INCA pour pouvoir reproduire les concentrations élevées de  $NO_x$  produites par les éclairs dans la haute troposphère observées pendant la campagne AMMA. Un test de sensibilité (LiNOx2) a donc été réalisé en augmentant de 50% les LiNOx dans LMDz\_INCA en Afrique. Les résultats de ce test sont présentés sur la figure 5.4 qui montre le  $\Delta O_3$  calculé à 545hPa et 240h. Ce test montre une augmentation de 2-4 ppbv des concentrations d' $O_3$  dans la moyenne troposphère entre l'Afrique de l'Ouest et les côtes Est du Brésil. Un  $\Delta O_3$  de 1-3 ppbv est également calculé en Afrique centrale. Dans la haute troposphère à 240hPa, l'augmentation d' $O_3$  atteint 3-6 ppbv dans le test LiNOx2 en Afrique de l'Ouest, au Golfe de Guinée et dans l'océan Atlantique. L'augmentation d' $O_3$  atteint jusqu'à 4 ppbv en Afrique centrale. La redistribution des LiNOx vers la haute et moyenne troposphère dans cette dernière région explique les augmentations d' $O_3$  calculées. Ce test montre que la contribution des LiNOx au budget régional de l'ozone en Afrique est sous-estimée dans LMDz\_INCA.

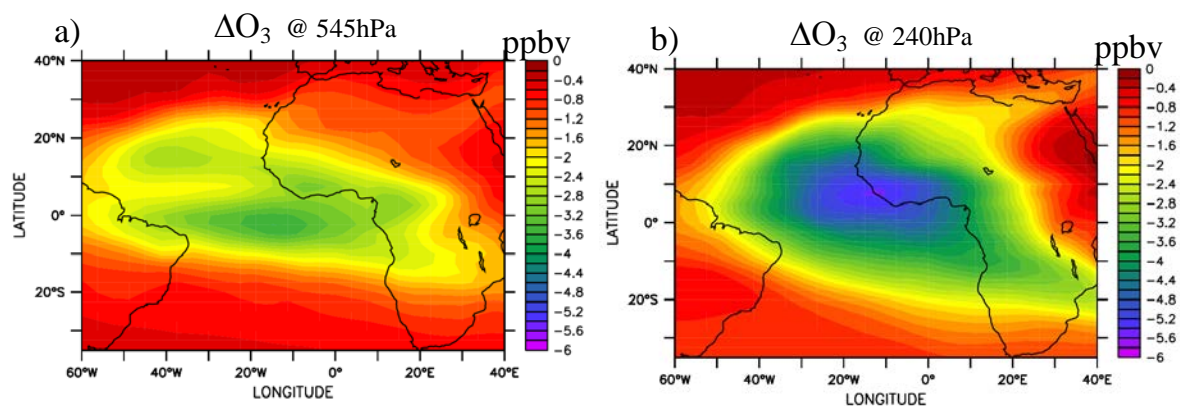


FIG. 5.4 – Cartes de  $\Delta O_3$  (ppbv) à 545 hPa (a) et 240 hPa (b) calculées (KE\_AMMA – LiNO<sub>x</sub>2) ; moyennes sur JJA.

### 5.3 Contribution des NO<sub>x</sub> émis par les sols

L'objectif de cette section est d'étudier l'influence des émissions de NO<sub>x</sub> par les sols en Afrique sur le bilan régional de l'ozone. En utilisant les observations satellite de GOME (Global Ozone Monitoring Experiment), Jaeglé et al. (2004) ont montré d'importantes augmentations des concentrations de NO<sub>2</sub> au Sahel pendant la saison de la mousson, et ont attribué ces augmentations à la production de NO<sub>x</sub> par les sols dans cette région. Galy-Lacaux et al. (2009), en analysant les données de NO<sub>2</sub> observées à la surface à Banizoumoubou (Niger) entre 1998 et 2004, dans le cadre du programme IDAF (GAC/DEBITS/Afrique : International Global Atmospheric Chemistry/Deposition of Important Biogeochemically Trace Species/Afrique), ont montré aussi une augmentation (de plus de 1 ppbv) des concentrations de NO<sub>2</sub> pendant la saison des pluies en JJA. L'étude effectuée récemment par Stewart et al. (2008) sur les données collectées par le B<sub>146</sub> pendant la campagne AMMA, montre aussi d'importantes augmentations des concentrations de NO<sub>x</sub> et PAN dans la couche limite dans les régions du Sahel au nord de 13°N. Des concentrations de plus de 1 ppbv de NO<sub>x</sub> et de 70 pptv de PAN ont été mesurées au dessus de ces régions après le passage des pluies. La distribution des émissions de NO<sub>x</sub> par les sols en Afrique, présentée au chapitre 1, montre aussi que des quantités élevées de NO<sub>x</sub> sont émises au Sahel au nord de 10°N pendant la saison humide. Ainsi, le rôle important des NO<sub>x</sub> dans la chimie de l'ozone et la présence de la convection au Sahel, pendant la saison de la mousson, qui peut redistribuer les NO<sub>x</sub> émis par les sols vers d'autres niveaux d'altitude a motivé l'étude de la contribution de ces émissions à l'ozone troposphérique présentée dans cette section.

Le test de sensibilité SNO<sub>x</sub> consiste à réduire de 20% la quantité de NO<sub>x</sub> émis par les sols en Afrique d'une manière uniforme dans le domaine D2. Le tableau 5.2 présente les quantités d'émissions de NO<sub>x</sub> par les sols, calculées sur le domaine D2, utilisées dans les simulations KE\_AMMA et SNO<sub>x</sub> en JJA.

### 5.3 Contribution des NO<sub>x</sub> émis par les sols.

Espèce	KE_AMMA	SNO <sub>x</sub> (-20% KE_AMMA)	Différence
NO <sub>x</sub> émis par les sols [Tg (N)]	0.37	0.3	0.07

TAB. 5.2 – Quantités de NO<sub>x</sub> en Tg (N) émis par les sols dans le domaine D2 en JJA, utilisées dans les simulations KE\_AMMA et SNO<sub>x</sub>.

La figure 5.5 présente le  $\Delta O_3$  calculé avec les simulations KE\_AMMA et SNO<sub>x</sub> en moyenne sur JJA et sur le domaine D1. En moyenne méridionale, les résultats montrent un  $\Delta O_3$  moyen d'environ 1 ppbv dans la basse troposphère au Sahel. Dans la haute troposphère, la région influencée s'étend de 20°S à 30°N. Le  $\Delta O_3$  moyen dans cette région atteint aussi près de 1 ppbv entre 400 hPa et 150 hPa. L' $O_3$  dans la moyenne troposphère est peu influencé dans le test SNO<sub>x</sub>. En moyenne zonale, les résultats montrent que dans la haute troposphère les régions entre 10°E et 30°W sont les plus influencées par le test SNO<sub>x</sub>. Ces résultats montrent ainsi que l'influence des NO<sub>x</sub> émis par les sols sur l'ozone en Afrique ne se limite pas seulement à la basse troposphère de la région d'émissions au Sahel, mais s'étend jusqu'à la haute troposphère et en dehors du continent Africain.

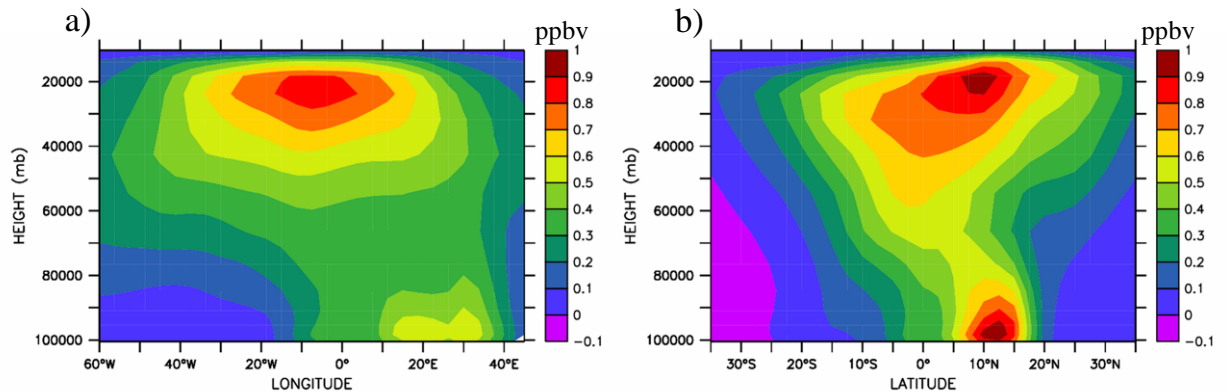


FIG. 5.5 – Moyenne zonale (a) et méridionale (b) sur JJA et sur le domaine D1 du  $\Delta O_3$  (en ppbv) calculé (KE\_AMMA – SNO<sub>x</sub>) .

La figure 5.6 représente des cartes de  $\Delta O_3$  à la surface, 765hPa, 545hPa et à 240hPa, calculées avec les simulations KE\_AMMA et SNO<sub>x</sub>. Le  $\Delta O_3$  à la surface dépasse 1 ppbv dans la région de fortes émissions de NO<sub>x</sub> par les sols au Sahel. L'influence du test SNO<sub>x</sub> sur l'ozone est moins significative dans les régions au nord de 16.5°N, où les pluies sont moins abondantes, et près des côtes Guinéennes où la couverture végétale est plus importante. Dans la moyenne troposphère à 765hPa et

545hPa, l'influence du test SNO<sub>x</sub> s'étend jusqu'au Golfe de Guinée. Cela peut s'expliquer par le transport des masses d'air continentales par l'AEJ vers l'océan Atlantique. Cependant le  $\Delta O_3$  calculé dans la moyenne troposphère est inférieur à 1 ppbv (0.4-0.8 ppbv). Ainsi, la contribution des émissions de NO<sub>x</sub> par les sols à l'ozone dans la basse et la moyenne troposphère en Afrique dans LMDz-INCA est plus significative au Sahel.

Stewart et al. (2008) ont montré, en analysant les données AMMA du B\_146, que les NO<sub>x</sub> émis par les sols induisent une production de 5 ppbv à 9 ppbv d'O<sub>3</sub> dans la basse troposphère au Sahel, quelques heures après la tombée de la pluie. Delon et al. (2008) ont calculé un taux de production d'O<sub>3</sub> par les NO<sub>x</sub> émis par les sols similaire (jusqu'à 10 ppbv) dans le modèle régional Mésos-NH. Saunoy et al. (2009) ont montré qu'une réduction des émissions de NO<sub>x</sub> par les sols au nord de 13°N dans le modèle Mésos-NH, conduit à une réduction jusqu'à 7 ppbv des concentrations de l'ozone dans cette région après une journée de simulation. D'après les résultats du test SNO<sub>x</sub>, on peut estimer qu'en supprimant complètement les NO<sub>x</sub> émis par les sols dans LMDz-INCA, la réduction d'O<sub>3</sub> au Sahel atteindrait jusqu'à 5 ppbv. Cette valeur est ainsi inférieure à celles calculées par les études ci-dessus et indique la faible production d'O<sub>3</sub> dans le modèle.

Dans la haute troposphère à 240 hPa, le  $\Delta O_3$  calculé dépasse 1 ppbv au dessus du Golfe de Guinée et l'influence du test SNO<sub>x</sub> s'étend jusqu'à l'océan Atlantique. Ainsi, dans LMDz-INCA, les NO<sub>x</sub> émis par les sols en Afrique contribuent aussi bien à l'ozone dans la haute troposphère que dans la basse troposphère. Cela peut s'expliquer par la redistribution des NO<sub>x</sub> émis par les sols vers la haute troposphère et en dehors du continent Africain par les différents processus de transport évoqués précédemment (Convection, TEJ, cellules de Hadley). Bien que les quantités de NO<sub>x</sub> émises par les sols (tableau 5.2) soient inférieures de 70% aux quantités de LiNO<sub>x</sub> (tableau 5.1) dans le domaine D2, le maximum du  $\Delta O_3$  calculé avec le test SNO<sub>x</sub> dans la haute troposphère (1.2 ppbv) est aussi significatif que le maximum calculé avec la simulation SLNO<sub>x</sub> (2.2 ppbv). Cela montre ainsi que les NO<sub>x</sub> émis par les sols contribuent aussi bien que les LiNO<sub>x</sub> au budget régional de l'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère en Afrique équatoriale. Jaeglé et al. (2005) ont montré que les émissions de NO<sub>x</sub> par les sols dans l'inventaire Yienger and Levy (1995), utilisé dans nos simulations, sont sous-estimées. La contribution des NO<sub>x</sub> émis par les sols au budget régional de l'ozone en Afrique est sous-estimée aussi dans le modèle.

## 5.4 Contribution des émissions biogéniques.

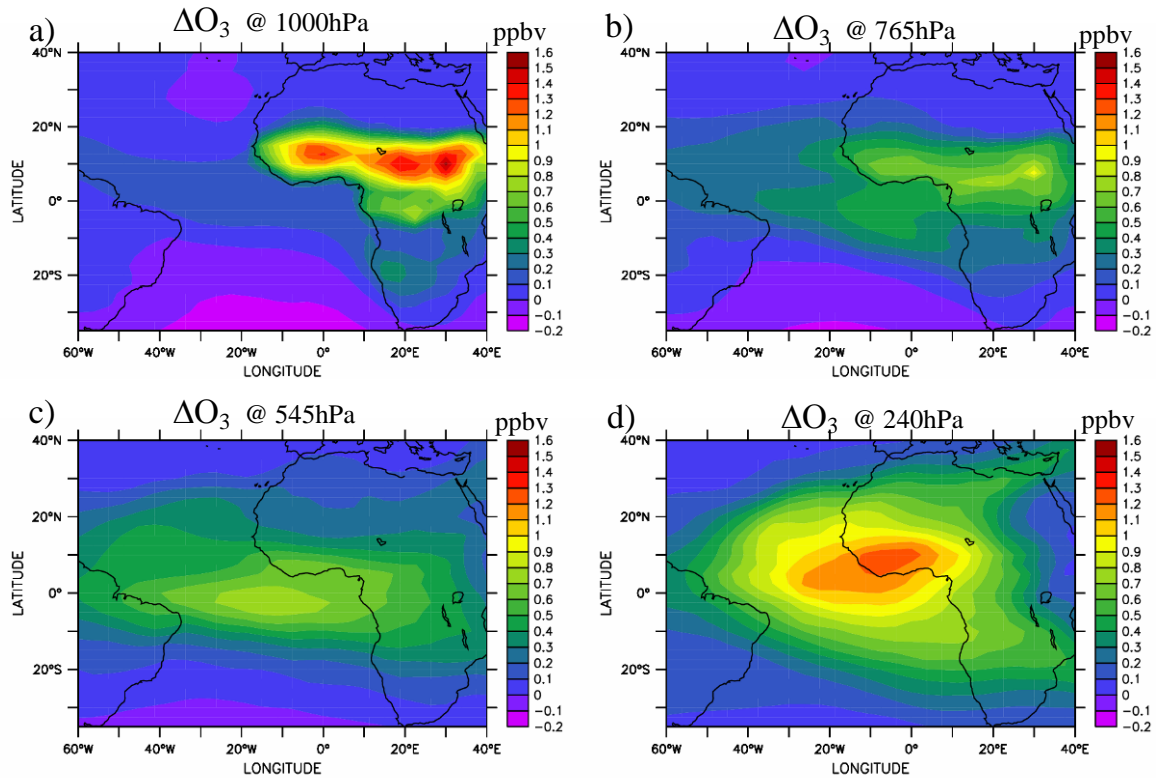


FIG. 5.6 – Cartes de  $\Delta O_3$  (ppbv) à 1000 hPa (a), 765 hPa (b) 545hPa (c) et 240 hPa (d) calculées avec les simulations KE\_AMMA et SNOx (KE\_AMMA – SNOx) ; moyennes sur JJA.

## 5.4 Contribution des émissions biogéniques

Les COVs émis par la végétation peuvent influencer significativement la chimie troposphérique par les nombreuses espèces chimiques émises d'une part et par leur grande réactivité dans l'atmosphère d'autre part. L'influence des émissions biogéniques sur l'ozone a été montrée dans plusieurs études. Aghedo et al. (2007) ont montré avec le modèle ECHAM5\_MOZ, une augmentation entre 10 ppbv et 30 ppbv des concentrations de l'ozone à la surface en Afrique quand les émissions biogéniques (CO, NO<sub>x</sub>, isoprène, terpènes et autre VOCs) sont considérées dans leur modèle. Ils ont montré aussi que pendant la saison de la mousson en JJA, l'augmentation de l'ozone se produit aussi bien dans les régions de l'hémisphère sud que dans l'hémisphère nord en Afrique. Saunois et al. (2009) ont montré que la suppression des émissions d'isoprène et des terpènes dans Mésio-NH induit une diminution d'environ 5 ppbv des concentrations de l'ozone dans les basses couches en Afrique de l'Ouest.

L'influence des émissions biogéniques en Afrique peut s'étendre jusqu'aux hautes altitudes sous l'effet du transport convectif. Les résultats de LMDz\_INCA, présentés au chapitre 3, montrent une augmentation des concentrations d'isoprène dans la haute troposphère à partir de 400hPa. Tie et al. (2003) ont calculé, avec le modèle MOZART-2 (Horowitz et al., 2003), une diminution de 2-3% des concentrations de l'ozone en Afrique équatoriale à 300 hPa quand les émissions de méthanol (CH<sub>3</sub>OH)



ont été supprimées dans leur modèle. Les émissions biogéniques peuvent donc influencer le budget régional de l’ozone en Afrique aussi bien dans la basse troposphère près des régions d’émissions que dans la haute troposphère.

Dans le test de sensibilité BIO présenté dans cette section, les quantités d’émissions biogéniques dans LMDz\_INCA (CO, NO<sub>x</sub>, isoprène, terpènes, méthanol et autres VOCs) ont été réduites de 20%. Le tableau 5.2 présente les quantités d’émissions d’isoprène, des terpènes et du méthanol, calculées sur le domaine D2, utilisées dans les simulations KE\_AMMA et BIO en JJA. Ces trois espèces représentent la plus grande fraction d’émissions biogéniques de COVs.

Espèces	KE_AMMA	BIO (-20% KE_AMMA)	Différence
Isoprène [Tg(C)]	21.67	17.33	4.34
Terpènes [Tg(C)]	4.14	3.31	0.83
CH <sub>3</sub> OH [Tg(C)]	3.56	2.85	0.71

TAB. 5.3 – Quantités d’isoprène, des terpènes et de méthanol en Tg (C), émises dans le domaine D2 en JJA, utilisées dans les simulations KE\_AMMA et BIO.

Les résultats de la simulation BIO sont présentés sur la figure 5.7. Le modèle simule un  $\Delta O_3$  de près de 1 ppbv dans les basses couches de l’atmosphère dans les régions où la couverture végétale est abondante entre 10°S et 15°N et entre 10°W et 30°E. Dans la haute troposphère, le modèle montre une plus grande influence des émissions biogénique et simule un  $\Delta O_3$  de près de 2 ppbv entre 200 hPa et 100 hPa dans les régions au nord de l’équateur. Les émissions biogéniques influencent des altitudes plus hautes de la troposphère (200-100hPa) en comparaison à l’altitude où le maximum du  $\Delta O_3$  est calculé avec les simulations SNOx et SLONx. Cela peut s’expliquer par une convection plus profonde dans les régions forestières en Afrique de l’Ouest. Comme le montre la distribution des pluies convective dans LMDz\_INCA, présentée au chapitre 3 (section 3.3.2), de fortes précipitations sont simulées par le modèle entre les côtes Guinéennes et 15°N indiquant une intensité de la convection dans ces régions dans le modèle.

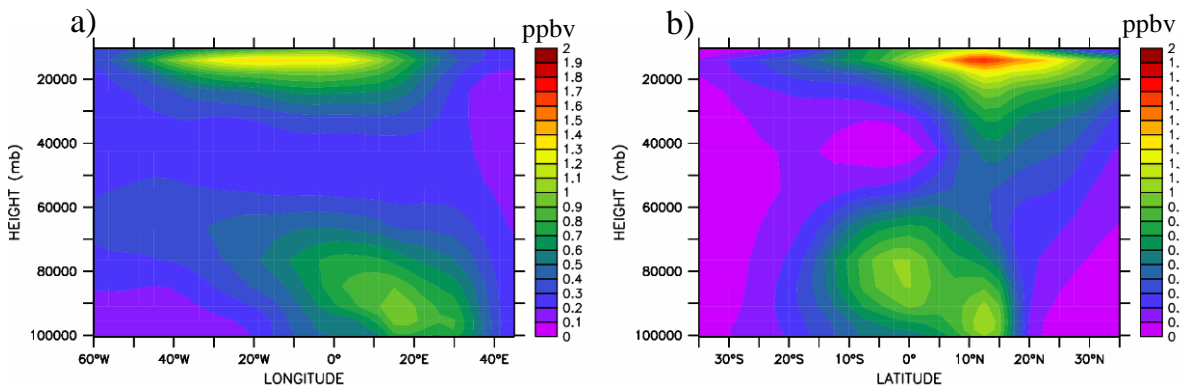


FIG. 5.7 – Moyenne zonale (a) et méridionale (b), sur le domaine D1 et JJA du  $\Delta O_3$  (ppbv) calculées (KE\_AMMA – BIO).

#### 5.4 Contribution des émissions biogéniques.

La figure 5.8 montre des cartes de  $\Delta O_3$  à la surface, 765hPa, 545hPa et à 140 hPa, calculées avec les simulations KE\_AMMA et BIO. Les résultats du test BIO montrent que la diminution de l’ozone à la surface est plus importante au dessus du Sahel et atteint près de 2 ppbv. Le modèle simule un  $\Delta O_3$  moins important par contre au dessus des régions de fortes émissions biogéniques près des côtes Guinéennes et au bassin du Congo. Les émissions biogéniques dans ces régions peuvent en effet être transportées plus au nord vers le Sahel par le flux de mousson dans les basses couches. La réduction de 20% dans les régions d’émissions biogéniques dans le test BIO conduit alors à une réduction des quantités transportées vers le Sahel et cela peut expliquer ainsi le  $\Delta O_3$  simulé dans cette région. Ces résultats sont en accord avec ceux de Saunois et al. (2009) qui ont montré que dans Mésio-NH l’ozone est moins influencé par les émissions biogéniques au dessus des régions d’émissions qu’au Sahel.

Dans la moyenne troposphère, le modèle simule un  $\Delta O_3$  de plus de 1 ppbv au dessus du Golfe de Guinée. Cela peut s’expliquer par la réduction des émissions biogéniques qui sont plus importante en Afrique centrale et en Afrique de l’Ouest. Les alizés de Sud-Est et le TEJ peuvent en effet redistribuer les émissions depuis ces régions vers l’océan Atlantique. Moins d’émissions biogéniques sont transportées vers le Golfe de Guinée dans le test BIO ce qui explique le  $\Delta O_3$  simulé dans cette région. Dans la haute troposphère à 140 hPa, l’influence du test BIO s’étend de 10°S à 30°N. La diminution des concentrations de l’ozone dans ce test dépasse 2 ppbv au dessus de l’Afrique de l’Ouest et de l’océan Atlantique et plus de 1 ppbv près des côtes Est du Brésil. La réduction des émissions biogéniques dans la simulation BIO peut expliquer ces diminutions de l’ozone dans la haute troposphère. En effet, le transport rapide des émissions biogéniques par la convection en Afrique vers la haute troposphère, où leur durée de vie augmente et où elles peuvent être redistribuées vers d’autres régions par le TEJ et la circulation de Hadley, peut induire une production de l’ozone loin de l’Afrique de l’Ouest.



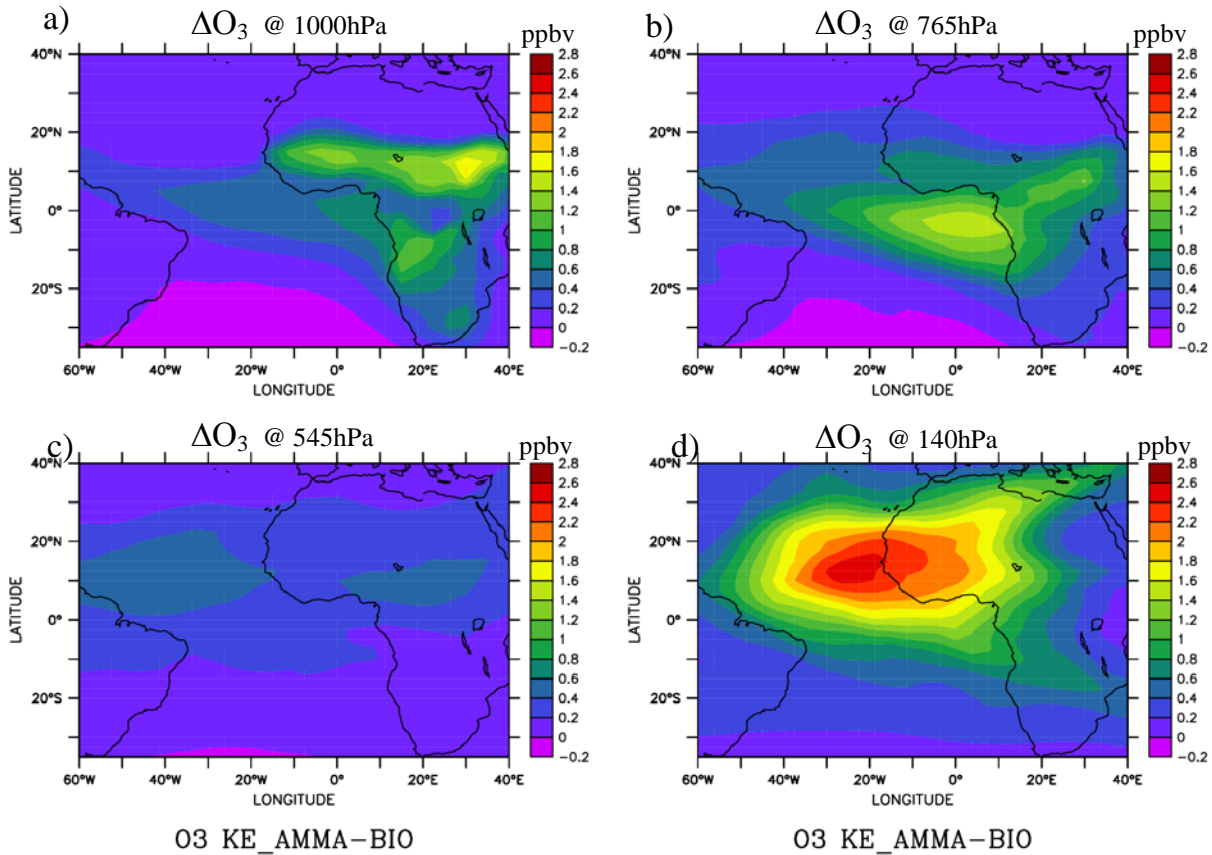


FIG. 5.8 – Cartes de  $\Delta O_3$  (ppbv) à 1000 hPa (a), 765 hPa (b) 545hPa (c) et 140 hPa (d) calculées (KE\_AMMA – BIO) ; moyennes sur JJA.

Le test BIO présenté dans cette section montre que les émissions biogéniques en Afrique peuvent influencer le budget régional de l'ozone aussi bien dans la haute troposphère que dans la basse et moyenne troposphère. En supprimant totalement les émissions biogéniques dans le modèle on peut estimer que le  $\Delta O_3$  maximum sera d'environ 9-11 ppbv dans la haute troposphère et 4-7 ppbv dans la basse et moyenne troposphère. Ces résultats sont obtenus en multipliant par 5 le  $\Delta O_3$  maximum calculé dans le test BIO dans la haute troposphère et dans la basse et moyenne troposphère. Ces résultats sont en accord avec les résultats de Aghedo et al. (2007) qui ont montré que les émissions biogéniques peuvent produire jusqu'à 10 ppbv d' $O_3$  en moyenne dans les régions tropicales entre 200 hPa et 100 hPa. Ces résultats sont également conformes au  $\Delta O_3$  maximum de 5 ppbv calculé par Saunois et al. (2009) dans la basse troposphère au Sahel quand les émissions biogéniques ont été supprimées dans le modèle MésO-NH. Les résultats de cette section montrent aussi que dans LMDz\_INCA, les émissions biogéniques contribuent aussi bien que les LiNO<sub>x</sub> à l'ozone dans la haute troposphère en Afrique équatoriale. Cependant, sachant que les LiNO<sub>x</sub> sont sous-estimés dans LMDz\_INCA, leur contribution à l'ozone dans la haute troposphère est supérieure à celle des émissions biogéniques.

## 5.5 Contribution des émissions anthropiques

Les cartes d'émissions anthropiques de CO et NO<sub>x</sub> dans l'inventaire AMMA présentées au chapitre 1 (section 1.3.1) indiquent que les régions les plus polluées en Afrique sont près des côtes Guinéennes (le Nigeria en particulier), l'Afrique de l'Est et l'Afrique du Sud. Le test de sensibilité ANTH présenté dans cette section vise à étudier l'influence des émissions anthropiques sur l'ozone troposphérique dans le domaine D1. Une réduction de 20% des émissions de CO et NO<sub>x</sub> en Afrique a été effectuée dans le test ANTH. Le tableau 5.4 montre les quantités d'émissions de CO et NO<sub>x</sub> en JJA dans le domaine D2 utilisées par les simulations KE\_AMMA et ANTH.

Espèce	KE_AMMA	ANTH (-20% KE_AMMA)	Différence
CO [Tg(CO)]	9.70	7.76	1.94
NO <sub>x</sub> [Tg(N)]	0.28	0.22	0.06

TAB. 5.4 – Quantités de CO [Tg(CO)] et NO<sub>x</sub> [Tg(N)] anthropiques émises dans le domaine D2 en JJA, utilisées dans les simulations KE\_AMMA et ANTH.

Les résultats du test ANTH (figure 5.9) montrent que les émissions anthropiques en Afrique de l'Ouest influencent l'ozone dans toute la colonne troposphérique entre l'équateur et 20°N. Cependant, le  $\Delta O_3$  calculé (maximum de 0.18 ppbv) est peu significatif en comparaison aux diminutions de l'ozone calculées par les tests LNOx, BIO et SNOx. Cela indique que la contribution des émissions anthropiques en Afrique au budget régional de l'ozone est faible dans LMDz\_INCA. Les émissions anthropiques en Afrique de l'Ouest sont plutôt concentrées sur le Nigeria où l'activité pétrolière est importante. Aussi, les émissions anthropiques de NO<sub>x</sub> dans cette région sont moins intenses que les émissions dans les régions polluées de l'hémisphère nord. Cette faible distribution spatiale des émissions anthropiques peut donc expliquer leur faible contribution au budget régional de l'ozone.

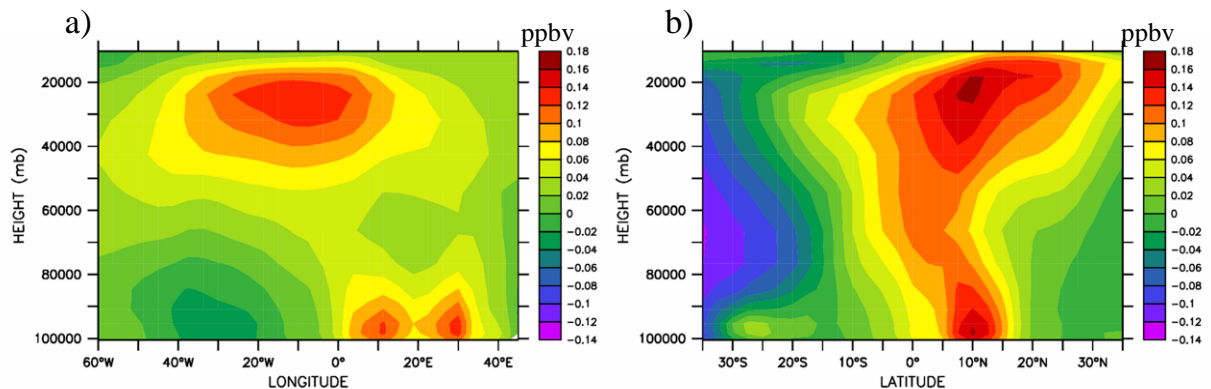


FIG. 5.9 – Moyenne zonale (a) et méridionale (b), sur JJA et sur le domaine D1, du  $\Delta O_3$  (ppbv) calculées (KE\_AMMA – ANTH).

La figure 5.10 montre le  $\Delta O_3$  à la surface, à 765hPa et à 240 hPa, calculé avec les simulations KE\_AMMA et ANTH (KE\_AMMA – ANTH) en moyenne sur JJA. A la surface, le maximum de  $\Delta O_3$  (0.5 ppbv) est calculé dans les régions de fortes émissions anthropiques au Nigeria et en Afrique du Sud. Dans la moyenne et la haute troposphère, la réduction de l’ozone simulée (maximum de 0.3 ppbv) s’étend de l’Afrique de l’Ouest à l’océan Atlantique.

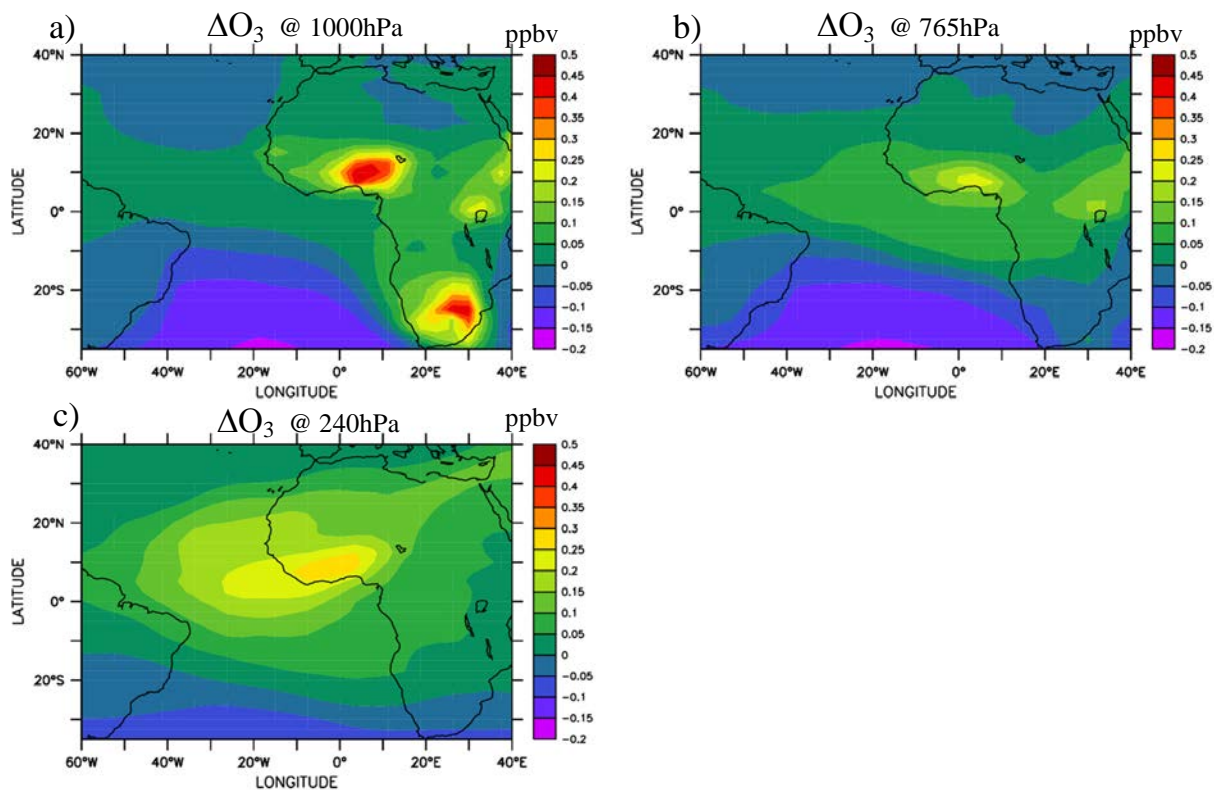


FIG. 5.10 – Cartes de  $\Delta O_3$  (ppbv) à 1000 hPa (a), 765 hPa (b) et à 240 hPa (c) calculées (KE\_AMMA – ANTH) ; moyennes des concentrations d’ $O_3$  sur JJA.

On peut estimer que la suppression complète des émissions anthropiques dans LMDz\_INCA peut conduire à une réduction de 1-3 ppbv des concentrations de l’ozone dans la basse troposphère et jusqu’à 1 ppbv dans la haute troposphère. D’autres études ont également montré que la contribution des émissions anthropiques à l’ozone en Afrique est moins significative que la contribution des LiNOx où des émissions biogéniques et ont calculé des valeurs de  $\Delta O_3$  qui sont en accord avec les résultats de LMDz\_INCA. En effet, Saunois et al. (2009) et Aghedo et al. (2007) ont calculé des réductions d’ $O_3$  de 1-3 ppbv et 1-5 ppbv respectivement dans la basse troposphère en Afrique de l’Ouest quand les émissions anthropiques ont été supprimées dans leurs modèles.

## 5.6 Contribution des émissions des feux de biomasse

L'analyse des résultats de LMDz\_INCA et des données AMMA au chapitre 4 a montré que les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale influencent considérablement les concentrations de l'ozone au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée. L'objectif du test BB présenté dans cette section est d'étudier la contribution de ces émissions à l'ozone dans le domaine D1. Les émissions de CO, NO<sub>x</sub> et des VOCs par les feux de biomasse en Afrique centrale pendant la saison de la mousson, ont été réduites de 20%. Le tableau 5.5 présente les quantités d'émissions de CO et NO<sub>x</sub>, calculées sur le domaine D2, utilisées par les simulations KE\_AMMA et BB en JJA.

Espèce	KE_AMMA	BB (-20% KE_AMMA)	Différence
CO [Tg (CO)]	154.94	123.95	31
NO <sub>x</sub> [Tg (N)]	3.1	2.48	0.62

TAB. 5.5 – Quantités d'émission de CO et NO<sub>x</sub> par les feux de biomasse en JJA dans le domaine D2 utilisées dans les simulations KE\_AMMA et BB.

Les résultats du test BB sont présentés sur la figure 5.11. Les concentrations de l'ozone dans basse et la moyenne troposphère en Afrique centrale sont les plus influencées par la réduction des émissions des feux de biomasse dans le test BB. Le  $\Delta O_3$  calculé est de 2- 5 ppbv entre la surface et 550 hPa. Dans la moyenne troposphère, l'influence s'étend jusqu'à l'océan Atlantique où un  $\Delta O_3$  de 2-3 ppbv est calculé entre 10°W et 10°E. Comme montré au chapitre 4, les alizés de Sud-Est transportent des masses d'air de Afrique centrale vers l'océan Atlantique. La réduction des quantités d'émissions des feux de biomasse en Afrique centrale se répercute donc sur les quantités transportées en dehors du continent, ce qui explique la diminution des concentrations de l'ozone au dessus de l'océan Atlantique dans le test BB. La haute troposphère en Afrique centrale entre 15°S et 5°N est également influencée par une diminution d'environ 1 ppbv des concentrations de l'ozone dans la simulation BB.

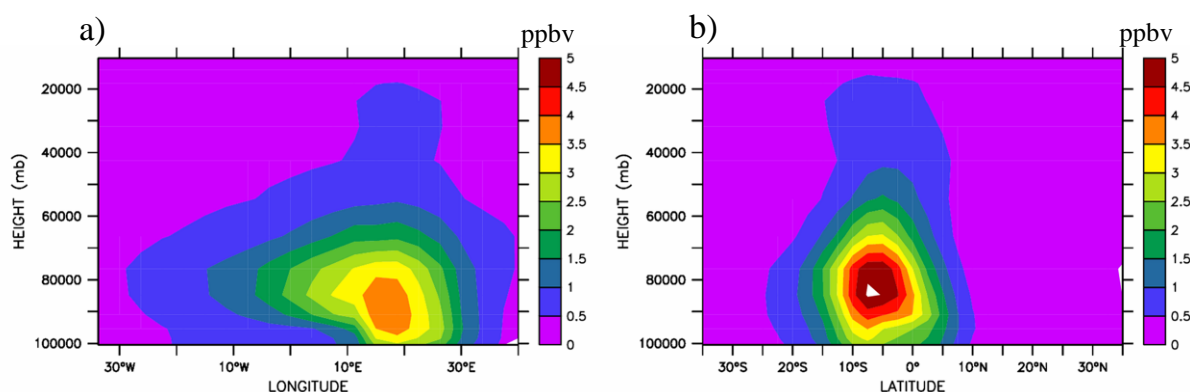


FIG. 5.11 – Moyenne zonale (a) et méridionale (b), sur JJA et sur le domaine D1, du  $\Delta O_3$  (ppbv) calculé (KE\_AMMA – BB).

La figure 5.12 présente des cartes de  $\Delta O_3$ , en moyenne sur JJA, calculées à la surface, à 765 hPa, 545 hPa et à 240 hPa en utilisant les simulations KE\_AMMA et BB. A la surface, la diminution de l'ozone dans le test BB atteint 10 ppbv au dessus de la République Démocratique du Congo (RDC) et de l'Angola où les émissions des feux de biomasse sont intenses. Le modèle simule également une diminution de 1 ppbv à 4 ppbv de l'ozone à la surface au dessus du Golfe de Guinée. Le transport des émissions des feux depuis l'Afrique centrale dans le flux de mousson influence en effet l'ozone dans les régions près des côtes Guinéennes. Aghedo et al. (2007) ont montré qu'en supprimant les émissions feux de biomasse dans le modèle ECHAM5-MOZ, les concentrations de l'ozone diminuent de 10 ppbv à 60 ppbv à la surface en Afrique centrale et de 5 ppbv à 20 ppbv au dessus de l'océan Atlantique. Les résultats du test BB et les réductions de l'ozone calculées permettent d'estimer qu'en supprimant complètement les émissions des feux de biomasse dans LMDz\_INCA, les concentrations de l'ozone à la surface peuvent diminuer jusqu'à 50 ppbv en Afrique centrale et de 5 ppbv à 20 ppbv au dessus du Golfe de Guinée. Ces résultats sont donc en accord avec ceux de Aghedo et al. (2007).

Dans la moyenne troposphère, l'influence des émissions des feux de biomasse s'étend jusqu'à 20°W. Le test BB simule une diminution de 1-4 ppbv d' $O_3$  au dessus du Golfe de Guinée et jusqu'à 8 ppbv au dessus de l'océan Atlantique. Dans la haute troposphère, le modèle simule une diminution de plus de 1 ppbv d' $O_3$  au dessus de l'Afrique centrale et de près de 1 ppbv au dessus de l'océan Atlantique. La diminution d' $O_3$  dans la haute troposphère dans les autres régions (e.g. Afrique de l'Ouest, Golfe de Guinée, loin des côtes centre africaines) est faible dans le test BB. Real et al. (2010), à l'aide du modèle lagrangien CiTTyCAT, ont calculé une production nette d' $O_3$  de 1.7 ppbv/jour et 1.4 ppbv/jour (en moyenne sur 10 jours de simulation) respectivement dans la moyenne et la haute troposphère au dessus de l'océan Atlantique. Leurs résultats montrent donc que les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale influencent aussi bien le budget de l'ozone dans la haute troposphère que dans la moyenne troposphère au dessus de l'océan Atlantique. Les résultats du test BB montrent que, contrairement aux résultats de Real et al. (2010), la contribution des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale à l'ozone dans la haute troposphère au dessus du Golfe de Guinée et de l'océan Atlantique est faible dans LMDz\_INCA. L'étude effectuée au chapitre 4 a montré que la forte intensité du transport zonal dans LMDz\_INCA fait que les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sont plus transportées vers l'océan Atlantique, dans la moyenne troposphère, que vers les régions de forte activité convective au nord, où elles peuvent être redistribuées vers l'Afrique de l'Ouest et l'océan Atlantique. Ce problème est récurrent dans la plupart des modèles globaux, notamment ceux utilisés dans le cadre du projet AMMA-MIP. Cela peut expliquer ainsi le faible  $\Delta O_3$  calculé dans la haute troposphère au dessus de ces régions en comparaison au  $\Delta O_3$  calculé dans la moyenne troposphère.



## 5.6 Contribution des émissions des feux de biomasse.

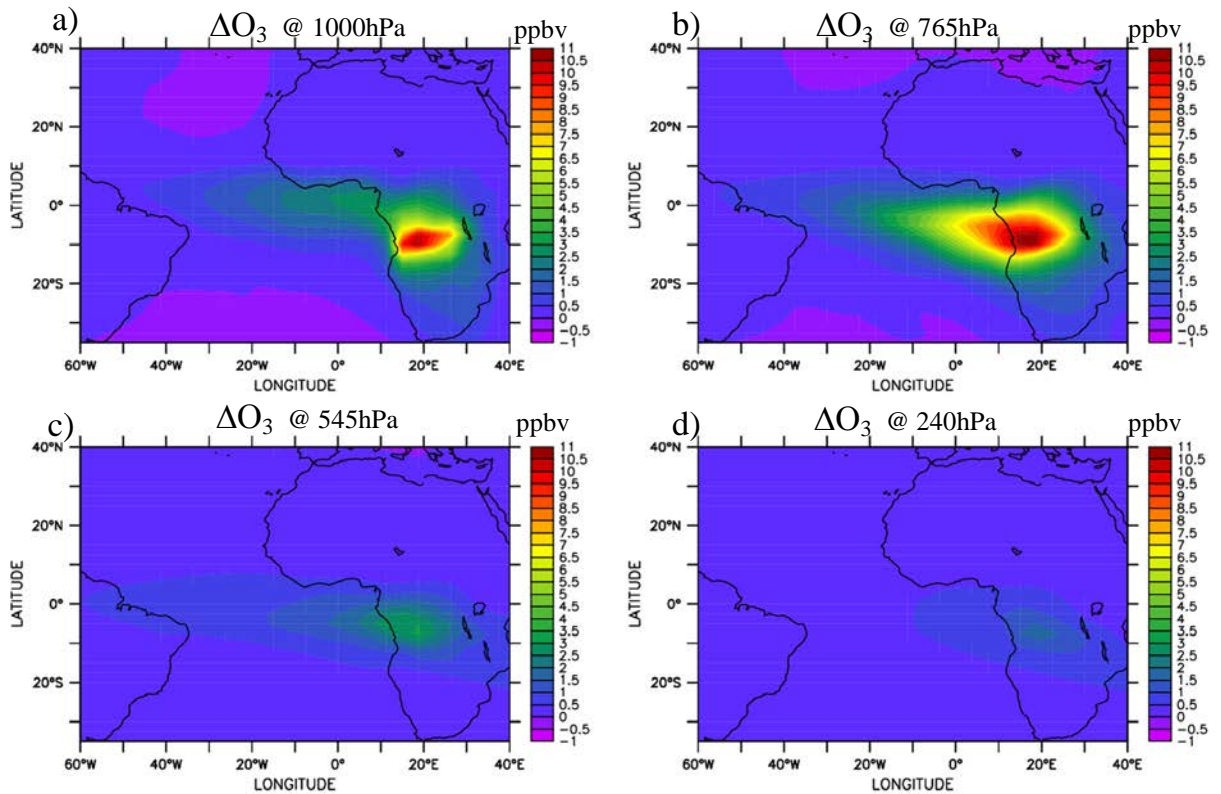


FIG. 5.12 – Cartes de  $\Delta O_3$  (ppbv) à 1000 hPa (a), 765 hPa (b), 545 hPa (c) et à 240 hPa (d) calculées (KE\_AMMA – BB) ; moyennes des concentrations d' $O_3$  sur JJA.

Les résultats du chapitre 4 montrent que l'injection à 3km d'altitude des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale peut améliorer les résultats de LMDz\_INCA au dessus du Golfe de Guinée en comparaison aux observations AMMA. La figure 5.13 présente des cartes de  $\Delta O_3$ , en moyenne sur JJA, calculées à 850 hPa, 765 hPa, 660 hPa et à 240 hPa en utilisant la simulation KE\_AMMA et la simulation INJ\_BB où les émissions en Afrique centrale ont été injectées jusqu'à 3km. Les résultats montrent une augmentation de 2-6 ppbv d' $O_3$  dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée et jusqu'à 18 ppbv d' $O_3$  au dessus de l'océan Atlantique dans la simulation INJ\_BB. Dans la haute troposphère, l'augmentation d' $O_3$  atteint 2-4 ppbv au dessus de l'Afrique de l'Ouest et du Golfe de Guinée. L'injection des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale dans LMDz\_INCA peut donc induire une contribution plus importante de ces émissions au budget d' $O_3$  dans la moyenne et la haute troposphère.

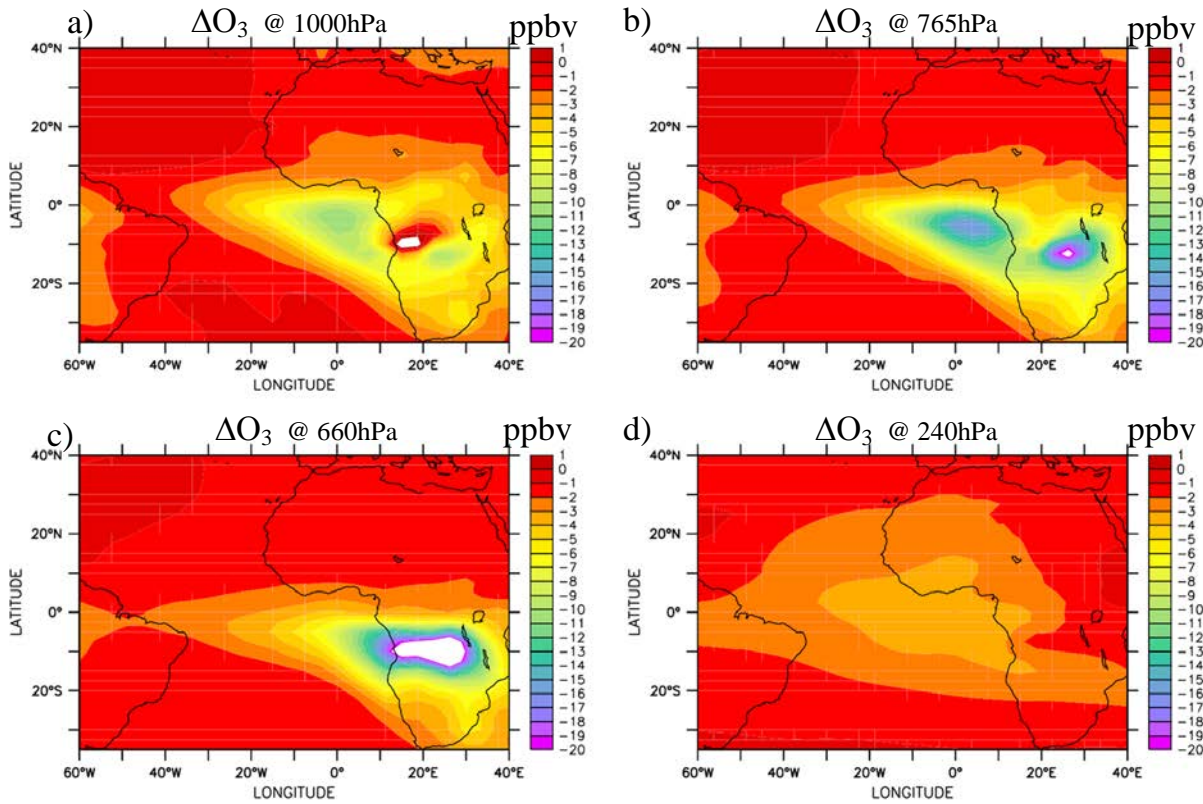


FIG. 5.13 – Cartes de  $\Delta O_3$  (ppbv) à 850hPa (a), 765 hPa (b), 660 hPa (c) et à 240 hPa (d) calculées (KE\_AMMA – INJ\_BB) ; moyennes des concentrations d' $O_3$  sur JJA.

## 5.7 Contribution des émissions asiatiques

L'objectif de cette section est d'étudier la contribution des émissions asiatiques au budget de l'ozone en Afrique pendant la saison de la mousson. Plusieurs études ont montré le transport de la pollution de la basse troposphère en Inde et en Asie du Sud-Est vers la haute troposphère (Li et al., 2005 ; Fu et al., 2006 ; Park et al., 2007 ; Berthet et al., 2007). Ce transport vertical est dû à la convection qui caractérise ces régions pendant la saison de la mousson asiatique en été boréal, et à l'influence de l'orographie dans l'Himalaya (Li et al., 2005). La pollution asiatique, une fois dans la haute troposphère, peut être transportée vers d'autres régions par la circulation à grande échelle (TEJ, anticyclone de la mousson asiatique). L'analyse des données de CO observées par l'instrument MLS (Waters et al., 2006) et des simulations du modèle MOCAGE (Bousserez et al., 2007 ; Ricaud et al., 2007), effectuée par Barret et al. (2008) ont montré le transport de CO depuis l'Asie vers l'ouest et le nord de l'Afrique dans la haute troposphère en juillet 2006. Law et al. (2010) ont montré aussi, en analysant les données AMMA du M55, la contribution des masses d'air asiatiques aux concentrations mesurées dans la haute troposphère et la basse stratosphère en Afrique.



## 5.7 Contribution des émissions asiatiques.

Dans le test de sensibilité ASIE présenté dans cette section, les quantités d'émissions anthropiques, biogéniques et feux de biomasse ont été réduites de 20% en Asie du Sud-Est (5°S-32.5°N, 67.5°E-123°E). Pour sa longue durée de vie dans l'atmosphère, le CO est utilisé dans cette étude pour diagnostiquer le transport à longue distance des émissions asiatiques. La figure 5.14 présente les cartes de  $\Delta\text{CO}$  calculées à 320 hPa, 240 hPa, 180 hPa et à 100 hPa, en moyenne sur JJA, calculées avec les simulations KE\_AMMA et ASIE. Dans la haute troposphère, la diminution de CO dans le test ASIE dépasse 10 ppbv au dessus de l'Asie du Sud-Est ce qui indique une influence du transport vertical convectif dans cette région sur la haute troposphère. Le moyen orient et l'océan Indien sont également influencés avec un  $\Delta\text{CO}$  de 4-8 ppbv. L'influence de la réduction des émissions asiatique dans le test ASIE s'étend aussi jusqu'à l'Afrique de l'Ouest et l'océan Atlantique, notamment aux altitudes 180hPa et 100hPa. Le  $\Delta\text{CO}$  calculé à ces niveaux est de 2-5 ppbv. Ces résultats montrent ainsi que dans LMDz\_INCA les émissions asiatiques peuvent influencer la composition chimique de la haute troposphère en Afrique de l'Ouest.

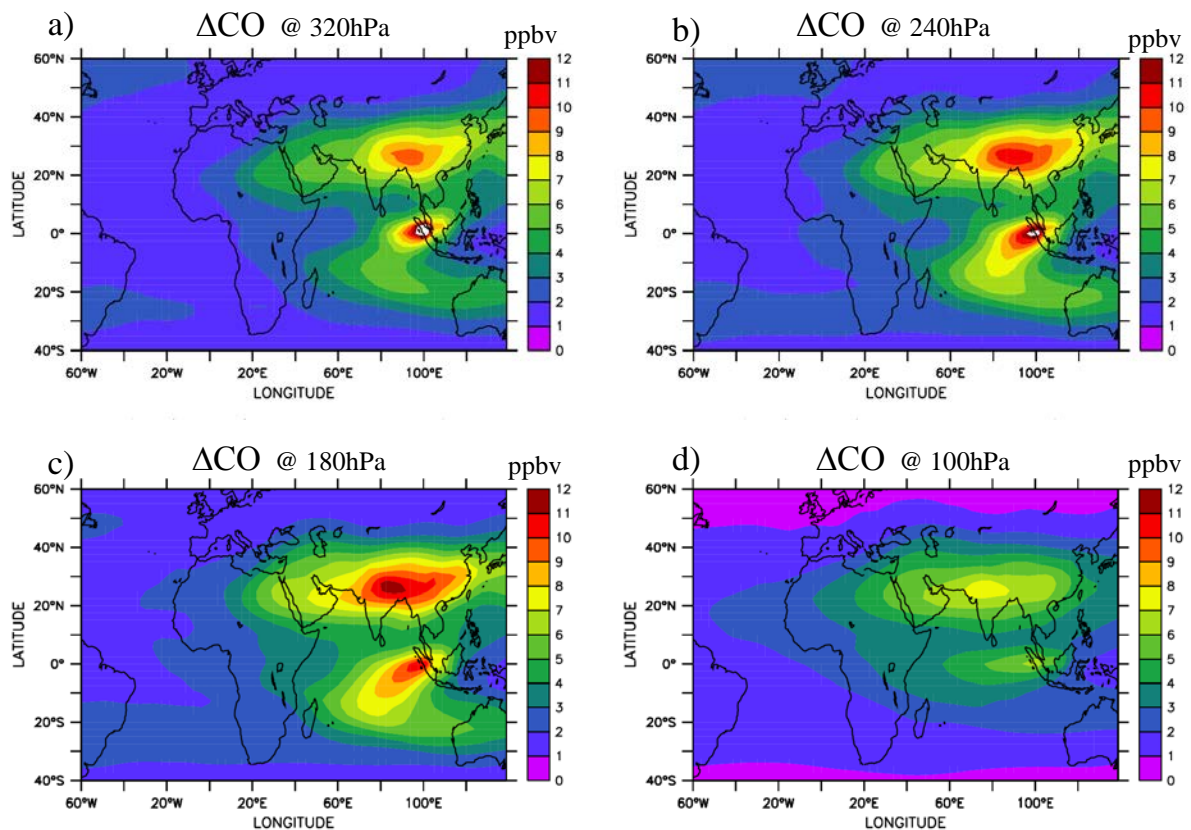


FIG. 5.14 – Cartes de  $\Delta\text{CO}$  (ppbv) à 320 hPa (a), 240 hPa (b), 180 hPa (c) et 100 hPa (d) calculées (KE\_AMMA – ASIE) ; moyennes sur JJA.

La figure 5.15 représente les  $\Delta\text{CO}$  et  $\Delta\text{O}_3$  calculés avec les simulations KE\_AMMA et ASIE, en moyenne méridionale entre 5°N et 30°N et sur JJA. Cette figure montre plus clairement la signature du transport zonal de CO depuis l’Asie. La diminution de CO dans la haute troposphère en Afrique est plus significative dans la couche 100-200 hPa. La distribution verticale de  $\Delta\text{O}_3$  montre une diminution de 1-5 ppbv des concentrations dans la haute troposphère en Asie et en Afrique. Le  $\Delta\text{O}_3$  maximum est calculé dans la couche 100-150 hPa.

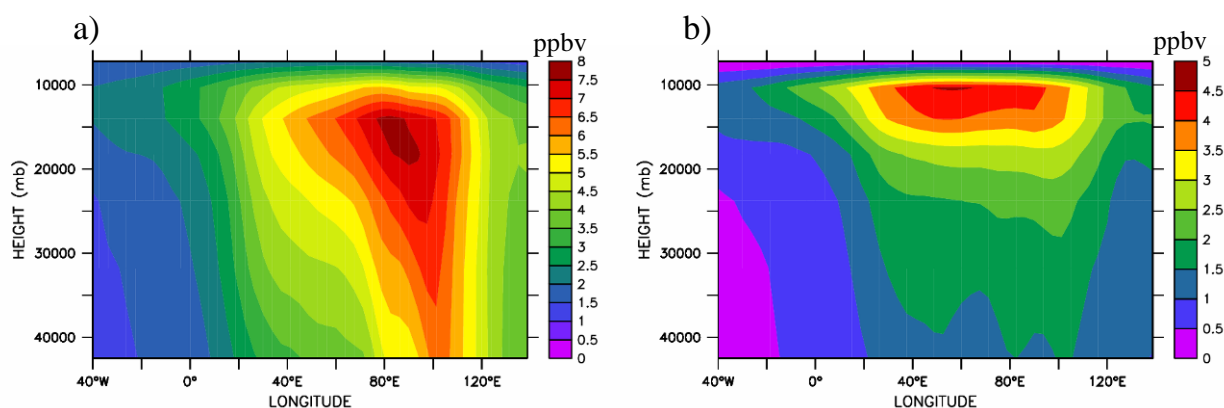


FIG. 5.15 – Moyennes méridionales, entre 5°N et 30°N (b) et sur JJA, de  $\Delta\text{CO}$  (a) et  $\Delta\text{O}_3$  (b) (en ppbv), calculés (KE\_AMMA – ASIE) entre 400hPa et 50hPa;

La figure 5.16 montre les cartes de  $\Delta\text{O}_3$  calculées à 320hPa, 240hPa, 180hPa et 100hPa. Aux altitudes 320hPa et 240 hPa, la diminution de l’ozone calculée atteint 4 ppbv au dessus de l’Asie et un peu moins de 1 ppbv au dessus de l’Afrique de l’Ouest. A 180hPa, le  $\Delta\text{O}_3$  atteint 1 ppbv en Afrique de l’Ouest et plus de 2 ppbv en Afrique du Nord. C’est au niveau 100 hPa que l’influence des émissions asiatique sur l’ozone en Afrique est plus forte. La diminution de l’ozone dans le test ASIE atteint jusqu’à 4ppbv en Afrique du nord, 2 à 3 ppbv en Afrique de l’Ouest, et 1 à 2 ppbv au dessus de l’océan Atlantique et du Golfe de Guinée. L’Afrique centrale est également influencée et montre un  $\Delta\text{O}_3$  de 1-2 ppbv. Ces résultats montrent ainsi que c’est dans la haute troposphère et la basse stratosphère que les émissions asiatiques influencent plus la composition chimique en Afrique de l’Ouest. Barret et al. (2008) ont montré aussi que la contribution principale aux concentrations de CO entre 150 hPa et 100 hPa en Afrique pendant la saison de la mousson vient du transport à longue distance des émissions asiatiques.

## 5.8 Conclusion.

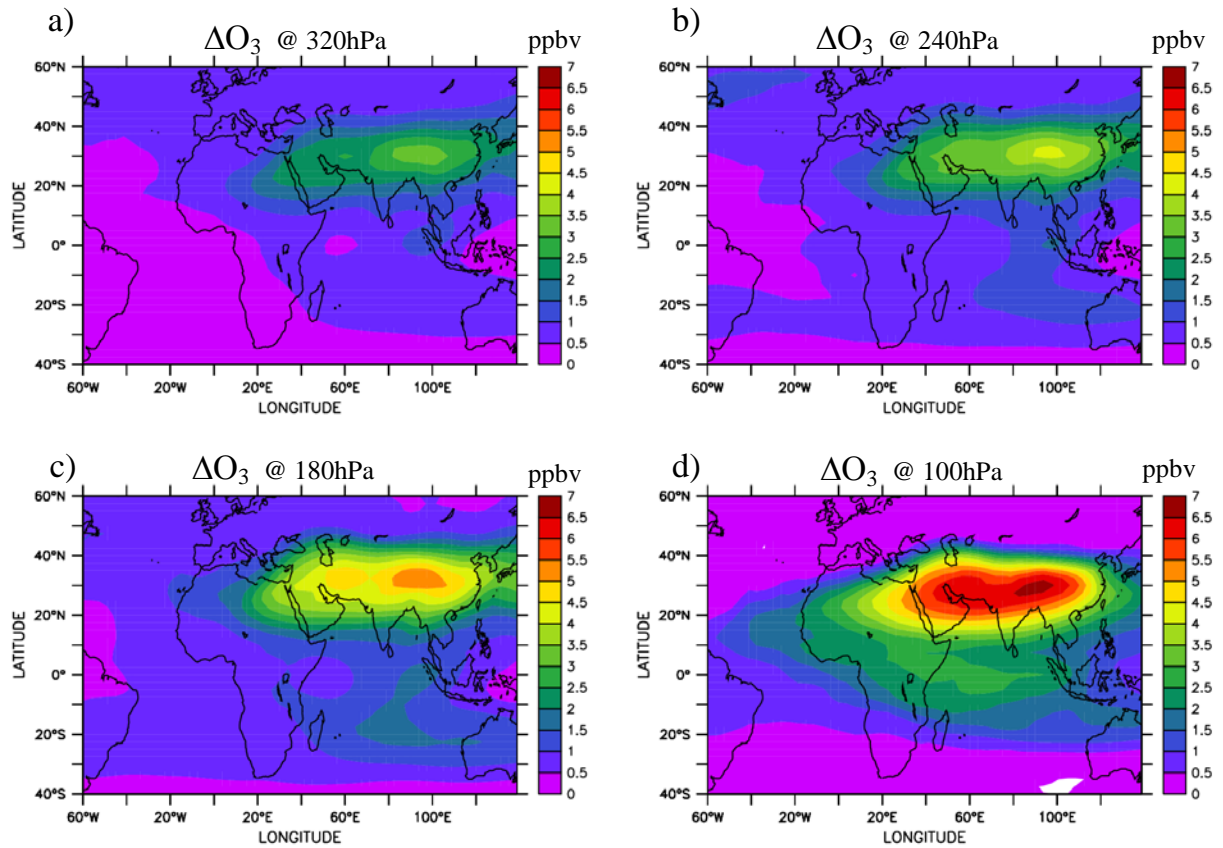


FIG. 5.16 – Cartes de  $\Delta O_3$  (en ppbv) à 320 hPa (a), 240 hPa (b), 180 hPa (c) et 100 hPa (d) calculées (KE\_AMMA – ASIE) ; moyenne sur JJA.

## 5.8 Conclusion

L'objectif de ce chapitre était d'étudier la contribution des émissions africaines et asiatiques au budget régional de l'ozone en Afrique pendant la saison de la mousson. Les tests de sensibilité aux émissions présentés (SLNO<sub>x</sub>, SNO<sub>x</sub>, BIO, ANTH et BB) ont permis ainsi d'identifier l'impact des émissions africaines de NO<sub>x</sub> par les éclairs et par les sols, des émissions biogéniques, anthropiques et des feux de biomasse sur l'ozone dans la troposphère en Afrique. Le test ASIE a permis d'analyser l'influence des émissions asiatiques car de plus en plus d'études montrent que ces émissions sont redistribuées par les processus de transport à longue distance vers l'Afrique et peuvent influencer ainsi la composition chimique de la troposphère de cette région (Barret et al., 2008 ; Law et al., 2010).

L'étude présentée dans chapitre montre que les différentes émissions africaines et asiatiques peuvent avoir des contributions plus ou moins différentes au budget régional de l'ozone en Afrique, et influencer différentes parties de la troposphère africaine. Le tableau 5.6 résume les résultats des tests de sensibilité analysés dans ce chapitre. Dans

ce tableau sont présentées les diminutions des concentrations d’O<sub>3</sub> (obtenues en calculant la différence absolue ( $\Delta O_3$ ) entre la simulation de référence KE\_AMMA et chaque simulation) suite à la réduction de 20% des quantités d’une catégorie d’émissions dans chaque test.

Simulations		Afrique de l'Ouest	Océan Atlantique	Golfe de Guinée	Afrique Centrale
SLNOx	MT:	1ppbv	> 1ppbv	> 1ppbv	> 1ppbv
	HT:	2-3ppbv	2-3ppbv	1- 2ppbv	1-2ppbv
LiNOx2	MT:	2-4ppbv	2-4ppbv	2-4ppbv	1-3ppbv
	HT:	3-6ppbv	3-6ppbv	3-6ppbv	2-4ppbv
SNOx	BT:	1-2ppbv			
	MT:	~ 1ppbv	~ 1ppbv	~ 1ppbv	~1ppbv
	HT:	1ppbv	1ppbv	1ppbv	~1ppbv
BIO	BT:	1-2ppbv	< 1ppbv	~ 1ppbv	~ 1ppbv
	MT:	~ 1ppbv	> 1ppbv	> 1ppbv	~ 1ppbv
	HT:	2-3ppbv	2-3ppbv	1-2ppbv	~ 1ppbv
ANTH	BT:	< 1ppbv	< 1ppbv	< 1ppbv	< 1ppbv
	MT:	< 1ppbv	< 1ppbv	< 1ppbv	< 1ppbv
	HT:	< 1ppbv	< 1ppbv	< 1ppbv	< 1ppbv
BB	BT:	1ppbv	1-2ppbv	1-4ppbv	3-11ppbv
	MT:		3-8ppbv	1-4ppbv	3-11ppbv
INJ_BB	MT:	1-3ppbv	7-18ppbv	2-6ppbv	10-25ppbv
	HT:	2-4ppbv	2-4ppbv	2-4ppbv	2-4ppbv
ASIE	MT:		1ppbv	1ppbv	1-2ppbv
	HT:	2-3ppbv	1-2ppbv	1-2ppbv	1-2ppbv

TAB. 5.6 –  $\Delta O_3$  (ppbv) calculés avec les simulations SLNOx, LiNOx2, SNOx, BIO, ANTH, BB, INJ\_BB et ASIE, dans la basse troposphère (BT), moyenne troposphère (MT) et dans la haute troposphère (HT) au dessus de l’Afrique de l’Ouest, de l’océan Atlantique, du Golfe de Guinée et de l’Afrique centrale ; fortes contributions à l’ozone (couleurs).

Dans la basse troposphère, sous l’influence du transport dans le flux de mousson, les émissions biogéniques et les émissions des feux de biomasse peuvent être transportées loin de leur région d’émissions où elles peuvent influencer l’ozone. Ainsi, le test BIO montre une diminution de l’ozone (1-2ppbv) au Sahel alors que les émissions biogéniques sont plutôt concentrées près des côtes Guinéennes. Le test BB montre des  $\Delta O_3$  de 1-4 ppbv et 1 ppbv respectivement au Golfe de Guinée et en Afrique de l’Ouest. Le test SNOx par contre montre que le  $\Delta O_3$  (1-2 ppbv) est plus significatif au Sahel où les émissions de NO<sub>x</sub> par les sols augmentent pendant la saison humide. C’est le transport convectif qui contribue plus à la redistribution de ces émissions. Dans la basse troposphère ce sont donc les NO<sub>x</sub> émis par les sols, les

émissions biogéniques et les émissions des feux de biomasse qui contribuent plus au budget de l'ozone.

Dans la moyenne troposphère, il apparaît que les LiNO<sub>x</sub> contribuent aussi bien que les autres émissions à l'ozone ( $\Delta O_3$  de plus de 1 ppbv). Les émissions biogéniques influencent plutôt l'ozone au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée ( $\Delta O_3$  de plus de 1 ppbv). Ces émissions sont en effet transportées dans la moyenne troposphère vers ces régions par l'AEJ. Ce sont les émissions par les feux de biomasse qui montrent une plus grande contribution à l'ozone dans la moyenne troposphère. Ces émissions influencent l'ozone aussi bien en Afrique centrale (3-11 ppbv) qu'au dessus de l'océan Atlantique (3-8 ppbv) et du Golfe de Guinée (1-4 ppbv). L'injection de ces émissions jusqu'à 3 km dans le test INJ\_BB montre que ces émissions apportent une plus grande contribution à l'ozone dans la moyenne troposphère.

Dans la haute troposphère, ce sont les LiNO<sub>x</sub>, les émissions biogéniques et les émissions asiatiques qui contribuent le plus au budget de l'ozone. La simulation SLNO<sub>x</sub> montre un  $\Delta O_3$  de 2-3 ppbv entre l'Afrique de l'Ouest et l'océan Atlantique et jusqu'à 2 ppbv dans les autres régions. Cependant, l'étude effectuée au chapitre 3 a montré que la production de NO<sub>x</sub> par les éclairs est sous-estimée dans LMDz\_INCA et qu'il faudra augmenter de plus de 50% les LiNO<sub>x</sub> dans le modèle pour reproduire les observations de NO<sub>x</sub> de la campagne AMMA. Le test de sensibilité LiNO<sub>x</sub>2, où les LiNO<sub>x</sub> ont été augmentés de 50% dans le modèle, montre une augmentation de l'ozone jusqu'à 4 ppbv et 6ppbv, respectivement dans la moyenne et la haute troposphère. Les émissions biogéniques et asiatiques apportent aussi une contribution non moins importante. La simulation BIO et ASIE montrent en effet des  $\Delta O_3$  jusqu'à 3 ppbv notamment au dessus de l'Afrique de l'Ouest et de l'océan Atlantique. Ce sont les émissions par les feux de biomasse et des NO<sub>x</sub> par les sols qui apportent la faible contribution à l'ozone dans la haute troposphère en comparaison aux autres sources d'émissions. Les  $\Delta O_3$  calculés avec les simulations BB et SNO<sub>x</sub> montrent des valeurs d'environ 1 ppbv dans la haute troposphère. La simulation INJ\_BB montre une augmentation de 2-4 ppbv d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère jusqu'à l'Afrique de l'Ouest quand les émissions des feux de biomasse sont injectées à 3km d'altitude. Cela montre ainsi que des éventuels problèmes de mélange ou de diffusion dans la couche limite de LMDz\_INCA peuvent induire une sous-estimation de la contribution des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale au budget de l'ozone dans la moyenne et la haute troposphère.

Cette étude montre ainsi que dans LMDz\_INCA les LiNO<sub>x</sub> et les émissions par les feux de biomasse contribuent majoritairement au budget régional de l'ozone en Afrique équatoriale. Cependant, les émissions biogéniques, les émissions de NO<sub>x</sub> par les sols ainsi que les émissions asiatiques apportent également des contributions significatives. L'inventaire Yienger and Levy (1995) semble sous-estimer les émissions de NO<sub>x</sub> par les sols d'après Jaeglé et al. (2005). La contribution de ces émissions au budget de l'ozone doit être sous-estimée dans LMDz\_INCA. Dans le modèle, les émissions anthropiques influencent faiblement le budget régional de l'ozone en comparaison aux autres sources d'émissions. C'est plutôt au niveau local et dans la basse troposphère que ces émissions peuvent influencer le budget de l'ozone.



## Conclusion et perspectives

L'objectif de cette thèse était d'étudier les processus qui influencent la distribution de l'ozone et de ses précurseurs en Afrique équatoriale pendant la saison de la mousson africaine en 2006. Ce travail s'est inscrit dans le cadre du programme AMMA dont l'un des objectifs principaux est d'étudier les mécanismes de la mousson africaine et leur influence sur l'environnement physique et chimique en Afrique équatoriale. Une campagne intense de mesures a eu lieu en Afrique de l'Ouest en été 2006 et de nombreuses données ont été collectées par les avions utilisés (M55, D\_F20, F\_F20, B\_146 et ATR42) afin d'analyser la composition chimique de la troposphère dans cette région. Ces données ont été utilisées dans ce travail de thèse qui a permis d'étudier :

- l'influence du transport convectif pendant la saison humide en été 2006 sur la composition chimique de la troposphère en Afrique équatoriale ;
- la production de  $\text{NO}_x$  par les éclairs dans cette région pendant la saison de la mousson ;
- l'impact des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale pendant l'été 2006 sur l'ozone et ses précurseurs en Afrique équatoriale ;
- la contribution des émissions africaines (émissions de  $\text{NO}_x$  par les éclairs et par les sols, émissions biogéniques, anthropiques et émissions par les feux de biomasse) et des émissions asiatiques au bilan régional de l'ozone.

Ces études ont permis également d'évaluer les performances du modèle de circulation générale de l'atmosphère couplé à un module de chimie et d'aérosols LMDz\_INCA, en Afrique équatoriale. Plusieurs simulations ont été réalisées pour étudier notamment l'impact des émissions et du schéma de convection sur les résultats du modèle. Des tests de sensibilité ont également été effectués afin d'analyser l'influence des émissions africaines et asiatiques sur l' $\text{O}_3$ .

L'analyse des données de la campagne AMMA, notamment les mesures effectuées autour des systèmes convectifs, et des simulations de LMDz\_INCA a permis d'étudier l'impact de la convection en Afrique de l'Ouest sur la composition chimique de la troposphère en Afrique de l'Ouest. Cette étude a montré que la convection influence considérablement la distribution de l'ozone et de ses précurseurs en Afrique tropicale. En effet des valeurs élevées de CO (près de 200 ppbv), de HCHO (plus de 1 ppbv) et d'isoprène ont été mesurées dans la haute troposphère et sont attribuées au transport convectif des émissions depuis la basse troposphère. Cette étude a montré également que les concentrations de CO et de  $\text{NO}_x$  mesurées, notamment dans la haute troposphère, dans des masses d'air influencées par la convection sont plus élevées que celles mesurées dans des masses d'air non influencées par la convection.

En supprimant le transport convectif dans LMDz\_INCA, les résultats montrent que la convection explique 40% des concentrations de CO et presque 100% des concentrations d'isoprène simulées dans la haute troposphère au dessus de l'Afrique



de l'Ouest. Les simulations montrent aussi que le transport convectif influence la haute troposphère au dessus de l'océan Atlantique. En effet, les processus de transport qui caractérisent la haute troposphère en Afrique de l'Ouest (TEJ, cellules de Hadley) redistribuent les espèces chimiques transportées par la convection vers la haute troposphère loin des régions de la convection. Les résultats du modèle sont sensibles au schéma de convection utilisé. LMDz\_INCA reproduit mieux les concentrations de CO, HCHO, NO<sub>x</sub> et NO<sub>y</sub> observées dans la haute troposphère avec le schéma de convection Kerry Emanuel. L'étude a montré que ce schéma représente de façon plus réaliste le transport par la convection profonde en Afrique de l'Ouest.

L'influence de la convection se manifeste aussi par la production de NO<sub>x</sub> par les éclairs (LiNO<sub>x</sub>). Des concentrations de plus de 1.4 ppbv de NO, attribuées aux LiNO<sub>x</sub>, ont été mesurées pendant la campagne AMMA dans la haute troposphère dans les masses d'air influencées par la convection. Les résultats de LMDz\_INCA montrent que les LiNO<sub>x</sub> expliquent 80% des concentrations de NO<sub>x</sub> simulées dans la haute troposphère. Cette étude montre aussi que les LiNO<sub>x</sub> influencent aussi bien la distribution de NO<sub>x</sub> que la capacité oxydante de la troposphère. Les résultats du modèle montrent en effet que les LiNO<sub>x</sub> induisent une augmentation de près de 60% de OH et de HNO<sub>3</sub> dans la haute troposphère en Afrique de l'Ouest.

LMDz\_INCA simule l'augmentation des concentrations de NO<sub>x</sub> observées dans la haute troposphère mais sous-estime les LiNO<sub>x</sub>. Les résultats des simulations montrent qu'il est difficile pour LMDz\_INCA, comme pour beaucoup de modèles globaux, de reproduire correctement les panaches de NO produits par les éclairs à cause notamment de la faible résolution spatiale utilisée d'une part et de l'incertitude qui subsiste sur les quantités et les paramétrisations des LiNO<sub>x</sub> d'autre part. Les résultats du modèle montrent qu'une augmentation de plus de 50% des LiNO<sub>x</sub> en Afrique dans LMDz\_INCA est nécessaire pour que le modèle reproduise mieux le profil moyen de NO<sub>x</sub> observé pendant AMMA.

Les données de la campagne AMMA ont été utilisées aussi pour analyser l'influence des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale sur la composition chimique de la troposphère en Afrique équatoriale. Les observations AMMA ainsi que les mesures satellites disponibles en 2006 ont montré que des concentrations élevées de plusieurs espèces chimiques (e.g. CO, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub>, HCHO) ont été observées dans la moyenne troposphère au dessus du Golfe de Guinée. Ces valeurs élevées sont dues au transport des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale par les alizés de Sud-Est. Les simulations de LMDz\_INCA, notamment les simulations réalisées avec les traceurs inertes, ont montré que le modèle reproduit bien ce transport zonal de l'Afrique centrale vers le Golfe de Guinée. Cependant, comme la plus part des modèles globaux qui ont participé au projet AMMA, LMDz\_INCA simule les maximums observés plus au sud du Golfe de Guinée. Ce désaccord est dû à l'intensité du transport zonal dans le modèle. Toutefois, les concentrations maximums, notamment de CO et d'O<sub>3</sub>, simulées plus au sud du Golfe de Guinée sont de même grandeur que les concentrations observées. LMDz\_INCA simule aussi la variabilité du transport des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale pendant l'été 2006, discutée par Mari et al. (2008). Cependant, le modèle simule avec un retard de 1-2 jours le début et la fin de la période de faible intrusion des plumes feux de biomasse

vers le Golfe de Guinée. Cela explique également le désaccord entre le modèle et les observations AMMA.

Les tests de sensibilité réalisés sur l'injection en hauteur des émissions par les feux de biomasse en Afrique centrale ont montré qu'en injectant ces émissions jusqu'à 3km d'altitude LMDz\_INCA simule une augmentation significative de CO et d'O<sub>3</sub> au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée. L'amélioration de la résolution horizontale du modèle avec notamment un zoom sur l'Afrique équatoriale, et l'injection en altitude des émissions par les feux de biomasse en Afrique centrale va donc améliorer les performances du modèle notamment au dessus du Golfe de Guinée.

L'influence des émissions par les feux de biomasse en Afrique centrale s'étend aussi jusque dans la haute troposphère en Afrique de l'Ouest. Ces émissions peuvent en effet être transportées vers les régions au Nord-Est de l'Afrique centrale (e.g. République Centre Africaine, Soudan) où une intense activité convective a été observée pendant la campagne AMMA. Une fois arrivées dans ces régions, les émissions peuvent être redistribuées vers la haute troposphère par la convection et transportées ensuite vers l'Afrique de l'Ouest par le TEJ. Les simulations du modèle avec les traceurs inertes définis sur l'Afrique centrale et l'Afrique de l'Est ont montré la redistribution de ces traceurs vers la haute troposphère en Afrique de l'Ouest. Les tests de sensibilité effectués, notamment en réduisant de 20% la quantité d'émissions des feux de biomasse, ont montré qu'il y a effectivement une contribution de ces émissions à la composition chimique de la haute troposphère en Afrique de l'Ouest notamment pendant les périodes de forte redistribution des masses d'air de l'Afrique centrale définies par Mari et al. (2008).

La dernière partie de ce travail de thèse était consacrée à l'étude de la contribution des émissions africaines et asiatiques au budget régional de l'ozone en Afrique équatoriale en utilisant LMDz\_INCA. Des réductions de 20% ont été effectuées sur les émissions asiatiques et individuellement pour chaque catégorie d'émissions en Afrique de l'Ouest (émissions biogéniques, anthropiques, LiNO<sub>x</sub>, émissions par les feux de biomasse) afin d'étudier leurs contributions au budget régional d'O<sub>3</sub>. L'analyse des résultats obtenus a été effectuée en calculant la différence absolue ( $\Delta O_3$ ) entre les concentrations d'O<sub>3</sub> calculées par la simulation de référence (KE\_AMMA) et simulées par chaque test de sensibilité réalisé. Cela a permis de déterminer à quel niveau de l'atmosphère et dans quelle région les émissions influencent la distribution d'O<sub>3</sub> en Afrique équatoriale. Cette étude montre que dans la basse troposphère, les émissions biogéniques, plus importantes près des côtes Guinéennes, influencent l'O<sub>3</sub> jusqu'au Sahel ( $\Delta O_3$  de 1-2 ppbv). Ces émissions sont transportées en effet vers cette région par le flux de mousson. Les émissions de NO<sub>x</sub> par les sols influencent également l'O<sub>3</sub> au Sahel ( $\Delta O_3$  de 1-2 ppbv) où elles sont plus abondantes. L'inventaire de Yienger and Levy (1995) utilisé dans les simulations semble sous-estimer les émissions de NO<sub>x</sub> ce qui induit la sous-estimation de la contribution de ces émissions au budget régional d'O<sub>3</sub>. Les émissions des feux de biomasse influencent l'O<sub>3</sub> en Afrique centrale et jusqu'au Golfe de Guinée ( $\Delta O_3$  de 1-4 ppbv) dans la basse troposphère.

Dans la moyenne troposphère, les émissions par les feux de biomasse en Afrique centrale apportent la plus grande contribution au budget d'O<sub>3</sub> (plus de 3-8 ppbv et 1-4 ppbv de  $\Delta O_3$  respectivement au dessus de l'océan Atlantique et du Golfe de Guinée).

Le test d'injection de ces émissions à 3km d'altitude a montré une augmentation jusqu'à 18ppbv d'O<sub>3</sub> au dessus de l'océan Atlantique et de 2-6 ppbv au dessus du Golfe de Guinée. Les résultats montrent que le modèle est plus performant quand ces émissions sont injectées en altitude. Les émissions biogéniques et les LiNO<sub>x</sub> apportent également une contribution significative à l'O<sub>3</sub> ( $\Delta O_3$  de plus de 1 ppbv) dans la moyenne troposphère. Dans la haute troposphère, c'est les LiNO<sub>x</sub>, les émissions biogéniques et les émissions asiatiques qui contribuent plus au budget de l'ozone en Afrique équatoriale. Les LiNO<sub>x</sub> influencent l'ozone jusqu'au dessus de l'océan Atlantique ( $\Delta O_3$  de 2-3 ppbv). Les tests de sensibilité effectués ont montré que les LiNO<sub>x</sub> et la convection induisent une augmentation d'O<sub>3</sub> de 2 ppbv/jour dans la haute troposphère. La sous-estimation constatée des LiNO<sub>x</sub> dans le modèle indique que leur contribution au budget régional d'O<sub>3</sub> est sous-estimée. Les émissions biogéniques et asiatiques contribuent aussi significativement au budget de d'O<sub>3</sub> en Afrique de l'Ouest ( $\Delta O_3$  de près de 3 ppbv). Le test d'injection à 3km d'altitude des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale a montré que ces émissions contribuent aussi au budget d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère jusqu'au dessus de l'Afrique de l'Ouest ( $\Delta O_3$  de près de 2-4 ppbv).

Les résultats de cette étude montrent que les émissions par les feux de biomasse et les NO<sub>x</sub> émis par les éclairs contribuent majoritairement au budget régional d'O<sub>3</sub> en Afrique équatoriale mais que les autres sources d'émissions apportent aussi des contributions significatives. Les émissions anthropiques apportent la plus faible contribution au budget d'O<sub>3</sub>. Cependant, la croissance démographique dans beaucoup de pays africains, notamment des les régions côtières, peut conduire à une augmentation de ces émissions et, par conséquent, de leur contribution au budget régional d'O<sub>3</sub>. La régression de la couverture végétale en Afrique due à la déforestation va induire une diminution des émissions biogéniques et une augmentation des émissions de NO<sub>x</sub> par les sols. D'éventuelles sécheresses dans le futur vont conduire à la réduction aussi bien des émissions biogéniques que des émissions de NO<sub>x</sub> par les sols. La contribution des émissions africaines au budget régional d'O<sub>3</sub> va donc changer dans le futur. La croissance démographique et économique des pays asiatiques peut conduire également à l'augmentation de leurs émissions. Ces dernières pourraient contribuer alors autant que les LiNO<sub>x</sub> et les feux de biomasse au budget d'O<sub>3</sub> en Afrique. Cette étude a montré aussi que les émissions des feux de biomasse en Afrique centrale influencent la composition chimique de la haute troposphère jusqu'au dessus du Golfe de Guinée et de l'océan Atlantique. Les résultats de LMDz\_INCA montrent la nécessité d'injecter en altitude ces émissions dans le modèle. Les résultats obtenus montrent également l'intérêt de l'utilisation des modèles globaux en général dans le calcul des bilans d'O<sub>3</sub>. En effet, ces modèles peuvent reproduire la production d'O<sub>3</sub> qui peut avoir lieu loin des régions d'émissions à l'exemple de l'augmentation d'O<sub>3</sub> simulée par LMDz\_INCA au dessus de l'océan Atlantique, qui est due à la redistribution des émissions africaines par les différents processus de transport qui caractérisent l'Afrique équatoriale pendant la saison de la mousson.

## Perspectives

L'exploitation d'autres bases de données disponibles, notamment dans le cadre des programmes IDAF et MOZAIC, va approfondir les études présentées dans cette thèse. Ces données, en plus des données AMMA, vont apporter une meilleure compréhension de la variabilité des émissions africaines et de leur influence sur l'ozone. L'étude de la variabilité interannuelle du transport des émissions des feux de biomasse en Afrique centrale vers l'Afrique de l'Ouest permettra aussi une meilleure compréhension de l'influence de ces émissions sur le budget régional d'O<sub>3</sub>. L'estimation du bilan régional d'O<sub>3</sub> en Afrique équatoriale va permettre d'évaluer la contribution de cette région au bilan global d'O<sub>3</sub>.

La réduction des incertitudes sur les émissions pourra améliorer les résultats du modèle ainsi que la compréhension des différents processus qui influencent le budget régional d'O<sub>3</sub>. Des inventaires d'émissions (e.g. émissions de NO<sub>x</sub> par les sols, émissions des feux de biomasse) en cours de développement dans le cadre du projet AMMA pourront ainsi être utilisés dans de prochaines simulations du modèle et pourront réduire les incertitudes des sorties du modèle. L'utilisation des scénarios d'émissions pour le futur, développés dans le cadre du GIEC par exemple, permettra aussi d'estimer les changements du budget d'O<sub>3</sub> en Afrique dans les prochaines décennies dus aux changements des émissions africaines et asiatiques.

Une analyse approfondie des émissions de NO<sub>x</sub> par les éclairs dans LMDz\_INCA est nécessaire afin d'améliorer les performances du modèle notamment en Afrique. L'étude pourra porter par exemple sur la distribution verticale des LiNO<sub>x</sub> et de la quantité de NO produite par chaque type d'éclairs (intra-nuageux et nuages-sols). Les résultats de récentes études en Afrique de l'Ouest (e.g. Höller et al., 2009) pourront être exploités afin d'améliorer les LiNO<sub>x</sub> dans LMDz\_INCA. Les résultats du modèle seront comparés aux résultats d'autres modèles dans le cadre du projet AMMA-MIP (Barret et al., 2010). Cette étude portera sur l'influence des LiNO<sub>x</sub> et de la convection dans ces modèles et apportera une plus grande compréhension des incertitudes qui subsistent dans la modélisation de la convection et des NO<sub>x</sub> émis par les éclairs.

Une nouvelle version du modèle LMDz\_INCA, en cours de développement, est caractérisée par une nouvelle paramétrisation de la couche limite, basée sur les résultats de Rio et Hourdin (2008), et une plus grande résolution verticale. Les résultats de cette nouvelle version du modèle vont être comparés aux résultats obtenus dans cette thèse afin d'analyser l'impact des changements effectués sur les résultats du modèle. L'utilisation d'une meilleure résolution horizontale (e.g. un 'zoom' sur l'Afrique) devra améliorer aussi le transport vers l'Afrique de l'Ouest. Le couplage de cette nouvelle version du modèle avec le modèle de la biosphère terrestre ORCHIDEE permettra une meilleure prise en compte des interactions entre les surfaces continentales et l'atmosphère. Cela permettra ainsi une meilleure évaluation de l'influence de la déforestation en Afrique tropicale sur le climat et sur la composition chimique de l'atmosphère dans cette région. La considération des aérosols dans le modèle permettra aussi une prise en compte des interactions entre les aérosols et la chimie de l'atmosphère.



## **Annexe A**

### **Intercomparaison de modèles globaux dans le cadre du projet AMMA-MIP.**

Williams et al. (2010)





## **Global Chemistry simulations in the AMMA-Model Intercomparison project**

Jason Edward Williams<sup>1</sup>, Idir Bouarar<sup>2</sup>, Kathy Law<sup>2</sup>, Beatrice Josse<sup>3</sup>, Xin Yang<sup>4</sup>, Rinus Scheele<sup>1</sup>, Peter van Velthoven<sup>1</sup>, Valerie Thouret<sup>5</sup>, Brice Barret<sup>5</sup>, Cathy Liousse<sup>5</sup>, Frederic Houdin<sup>6</sup>, Vincent-Henri Peuch<sup>3</sup>, John Pyle<sup>4</sup>, Sophie Szopa<sup>7</sup>, Anne Cozic<sup>7</sup>

1 : KNMI, Wilhelminalaan 10, De Bilt, The Netherlands, Williams@knmi.nl.

2 : SA/IPSL, UPMC, Tr 45-55, 3et, 75252 Paris Cedex 5.

3 : CNRM-GAME (CNRS and Météo-France) 42 Avenue Corolis 31057 Toulouse Cedex.

4 : Centre for Atmospheric Science and , Department of Chemistry, University of Cambridge, Cambridge CB2 1EW, UK.

5 : Valerie Thouret, Brice Barret, Cathy Liousse, Laboratoire d'Aéronomie, University Paul Sabatier, Toulouse.

6 : LMD, UPMC, Tr 45-55, 3et, 75252 Paris Cedex 5.

7 : LSCE/IPSL, UPMC, Tr 45-55, 3et, 75252 Paris Cedex 5.

## Abstract

Here we present the first results obtained from the chemistry-transport modelling (CTM) component of the AMMA Multi-Model Intercomparison exercise using the J3LRCv2 emission dataset for Africa, where we place emphasis on the summer of 2006. With the use of passive tracers we show that the application of different parameterizations to describe both advection and mixing in a suite of state-of-the-art Global CTM's results in significantly different transport mechanisms near the African Continent. Moreover, we identify that the atmospheric composition over the Southern Atlantic is governed by air masses originating from Southern Africa for this period resulting in maximal concentrations around 5°S. Comparisons with ozonesondes at Cotonou (6.6°N, 2.2°E) indicate that the models generally over predict surface ozone and under predict ozone in the upper troposphere. Moreover, using recent aircraft measurements we show that the high ozone concentrations which occur around 700hPa around 5°N are not captured by any of the models indicating shortcomings in either the description of transport, NO<sub>x</sub> emissions or chemical ozone production by the various chemical mechanisms employed.

## 1. Introduction and Background

The emission of gaseous and particulate matter as a result of both biomass burning and wildfires has been identified as being one of the most dominant sources of atmospheric trace gas species for some time (Crutzen and Andreae, 1990). The interannual variability of the intensity of biomass burning events, in tandem with the seasonality associated with such burning periods, also introduces a significant degree of uncertainty with respect to the total global emissions that are subsequently released from such fires for each particular year (van der Werf et al, 2006). In order to be able to reduce such uncertainty, a variety of satellite data is currently being utilized to produce comprehensive datasets of emission fluxes for a whole range of chemical species. The three dominant datasets currently available are, namely, GFEDv2, GLOBSCAR and GBA (see van der Werf et al. (2003), Simon et al. (2004) and Michel et al. (2005), respectively). These different satellite products adopt various methodologies which often couple observational data taken from different satellite instruments to some type of regional model, resulting in a range of emission estimates (e.g. Ito and Penner, 2005). For instance, when considering globally integrated emissions, Africa is consistently the most dominant source region for all of the emission datasets (Jain, 2007). In order to perform accurate global simulations these emission datasets are also supplemented with contributions from other important emission sources such as the injection of nitrogen oxides from by both soil and lightning (Sauvage et al, 2007a).

Once released, the strong convective transport that occurs over Equatorial Africa results in efficient vertical mixing of emissions that are released near the ground. Moreover, differences in the dynamics and circulation which occurs between the Earth's hemispheres during Africa's dry and wet seasons also have the potential to introduce effects for the regional composition of the troposphere. For instance, using a meso-scale model, Sauvage et al. (2007b) have found that in the NH dry season the African Easterly Jet (AEJ) allows efficient transport of biomass burning

emissions released in Central Africa to reach the Western Coast as detected by MOZAIC flight data taken in Lagos (6.6°N, 3.3°E). In contrast, during the wet season emissions that originate in South Africa tend to dominate. Moreover, there is also regional (horizontal) transport of air masses during the winter to Equatorial Africa, most notably by the Harmattan and the AEJ, which inhibits vertical mixing during this season (Sauvage et al, 2005). Therefore, any chemical model chosen to investigate the effect regional emissions have on atmospheric composition over Africa must have the ability to account for the long-range transport of chemical pre-cursors, aerosols and long-lived trace gases both into and out of the region of interest.

As part of the AMMA Multi-model Intercomparison Project, AMMA-MIP (Hourdin et al. (2008), this issue), we have performed model simulations for the year 2006 with a focus on Africa. We concentrate on 2006 in order to exploit the wealth of measurement data taken during an intensive measurement campaign that was performed during July-August of that year. For this purpose we define a set of passive tracer species for the different latitudinal ‘zones’ in Africa in order to investigate the differences introduced by the various convective transport mechanisms, model resolutions and meteorology adopted in a set of state-of-the-art global chemistry transport models. The analysis is conducted using 2D cross-sections averaged between 2°W-6°E for the latitudes 20°S-40°N, which is similar to that used by the Global Circulation Models which are involved in AMMA-MIP (Hourdin et al., 2008). Moreover, the simulations presented here are chemically active, where we use the recent emission estimates that have been derived using the L3JRCv2 burnt area product for the year 2006. These estimates are based on the Global Burnt Area product derived from the SPOT-VEGETATION data (Michel et al, 2005). This dataset provides an alternative to the commonly used GFEDv2 emission datasets derived using the burnt area measurements from MODIS (Giglio et al, 2006) in conjunction with the CASA biogeochemical model. This is the first time that this version of the LA emission dataset has been coupled to such large-scale chemistry transport models (CTM's).

### **Description of the participating models**

In total four different CTM's were involved in this intercomparison exercise, with these being LMDZ-INCA (Hauglustaine et al., 2004), MOCAGE (Teyssedre et al., 2007), TM4 (van Noije et al, 2006) and p-TOMCAT (Yang et al., 2005). Each model uses a different combination of parameterizations for the description of convective transport, advection and diffusivity. Moreover, the horizontal resolution of the models over Africa varies between 0.5° x 0.5° (MOCAGE) to 2.5° x 3.75° (LMDZ-INCA) which introduces differences in the performance of such parameterizations. Table 1 below outlines the main differences between both the transport and chemistry components used in each model.

For this experiment we adopt the global emission datasets defined within the EU-GEMS project (<http://gems.ecmwf.int>). These are based on a hybrid assembled from the RETRO anthropogenic (<http://retro.enes.org/>) and GFEDv2 biomass burning (van der Werf et al, 2006) emission datasets, which are both readily available. For Africa, which is defined as the region between 20°W-40°E and 40°S-30°N, we apply the recently developed J3LRCv2 biomass burning and biofuel database (Lioussé et al, 2004). Comparing the monthly emission fluxes for trace gases such as CO and NO<sub>x</sub> (a composite of NO and NO<sub>2</sub>) reveals that the J3LRCv2 dataset emits significantly higher quantities of these gases from biomass burning during the season JJA compared to the GFEDv2 dataset. For instance, the total emission flux for CO in this region

during JJA increases from ~63 Tg CO to ~165 Tg CO. Hence, the impact on the composition of the troposphere is potentially large over Africa.

### ***Description of the passive tracer regions***

In view of the fact that each participating model uses a combination of different parameterizations for the description of transport and mixing, we introduce five passive tracers in order to diagnose the differences introduced into each model with respect to transport of air masses within the African Continent. In addition a stratospheric tracer has been defined in order to diagnose the strength of intrusions from the stratosphere into the (upper) troposphere. Each passive tracer concentration is fixed below 850hPa within the respective regional domain at an arbitrary concentration of 100pptv and given a fixed lifetime of 20 days. During the simulations the passive tracers are continually replenished below this pressure limit every model time-step. The definitions of the latitudinal regions in which each of the passive tracers are initialised are given below in Table 2.

### ***Differences in Meteorology and convective mixing***

Here we present direct comparisons of the resulting distributions of selected passive tracers between each of the participating models. For this purpose we calculate and compare monthly means from the 3 hourly output fields for the 2D cross-sections. The seasonality of the biomass burning seasons is governed by periods of extended dryness, meaning that the most intense burning activity occurs in Northern Africa during the season DJF, whereas for Southern Africa it occurs during the season SON (e.g. Giglio, et al., 2006). Moreover, the movement of the ITCZ throughout the year has the potential to make certain transport pathways between the hemispheres essentially ‘blocked’. Therefore we show monthly means for both February and August to highlight the differences introduced between the NH winter and summer.

Figure 1 shows comparisons for February and August 2006 for the Sahel tracer between all of the participating models. In general, the models driven by ECMWF meteorological fields show similar tracer distributions for both months, although the southerly transport is more limited during August in all models as a consequence of the movement of the ITCZ. The MOCAGE model, which is driven by meteorology from the operational ARPEGE-Tropiques model, exhibits the strongest convective transport regardless of the time of year. Moreover, comparing the strength of the convective transport between each model reveals changes in model performance throughout the year. For instance, TM4 shows the weakest convective activity during February whereas p-TOMCAT shows the weakest convective activity during August.

Figure 2 shows the corresponding comparisons for the Guinea (0°N-10°N) passive tracer. It can be seen that for February quite different behaviour is exhibited for each model at the coastal interface (located at ~5°N). For LMDZ-INCA there is clearly an over-turning above the South Atlantic Ocean at around 500hPa. Although there are indications that southward transport occurs for both p-TOMCAT and TM4 these models fail to capture the sharp contours shown by LMDZ-INCA. Again, the strong convective transport in MOCAGE results in exaggerated vertical transport for this time of year when compared to the other models. For August the comparisons

indicate that there appears to be a barrier to southward transport at the coast compared with that shown for February. This feature is shown by all of the participating models.

Figure 3 shows the resulting distribution for the South African passive tracer. For this tracer the actual source region occurs towards the east of the 2D transect used for calculating the cross-sections. Therefore the tropospheric distribution of this tracer gives some indication as to the extent and efficiency of transport of air away from the African continent towards the West for each season. It can be seen that for NH winter the maximal concentrations occur at higher altitudes. This suggests that as a result of the position of the ITCZ, the tracer is lofted by convective. Again, the highest tracer concentrations are exhibited by MOCAGE as a result of the strong convective transport over land. Another striking feature is that for LMDZ-INCA the highest tracer concentrations are essentially isolated from the lower troposphere compared with (e.g) p-TOMCAT. This suggests different mechanisms for transport govern the advection off the West African coast between the models. Moreover, transport north of the equator seems more efficient during the summer, where significant concentrations reach land (5°N-10°N). This is somewhat different to the results shown for the Guinea passive tracer in Figure 2 for which transport towards the South is rather muted. For the same period, Mari *et al* (2008) have used passive tracers in a Lagrangian parcel model to identify the efficient transport of biomass burning plumes out across the Atlantic Ocean in the southern hemispheric African Easterly Jet. Apart from a 'break' phase that occurred during the first week of August, the transport of air containing significant chemical signatures of biomass burning activity remained persistent throughout the entire month. The contours in Figure 3 show that the Global CTM's also capture this movement of air for this period. Further analysis using the periods defined in Mari *et al* (2008) indicate that the 'break' phase is also captured in the CTM's (not shown).

### ***Differences in trace gas distributions***

Next we show that the latitudinal position where the maximal concentrations of important trace gas species exhibits a strong correlation with the maximum for the South African tracer during NH summer for all participating models. Figures 4 and 5 show the tropospheric distribution of CO and O<sub>3</sub> along the 2D transect for February and August, respectively. Since O<sub>3</sub> is not emitted directly it is formed *in-situ* as a typical air mass 'ages' via photolytic and chemical reactions involving both nitrogen oxides, hydrogen oxides and non-methane hydrocarbons. These diagrams clearly show that higher concentrations of both trace gas species occur during the summer in line with the increased burning activity that occurs as defined in the J3LRCv2 emission dataset.

Such concentrations are higher than those calculated using the GFEDv2 emission database (not shown) as would be expected considering the substantial increase in emissions over the season JJA (not shown). For CO, which has a typical atmospheric lifetime of between 1-2 months, there are differences between the models in both seasons. For instance, the pressure level at which the highest CO occurs during February varies between ~500hPa (LMDZ-INCA, p-TOMCAT) to ~900hPa (MOCAGE, TM4). Comparing the distribution of the Guinea and South African tracer for February indicates that the most important source region for CO in this period lies between 0°-10°N, where the total monthly emission is ~ 20% of that for August. For August, although the distribution of CO is similar in all models that maximal CO varies by upto 100ppbv indicating either faster transport or slower chemical destruction. For O<sub>3</sub>, TM4 exhibits the highest

concentrations for both months of all the models, followed by MOCAGE, p-TOMCAT and LMDZ-INCA. This variability is due to differences in the chemical production efficiency for O<sub>3</sub>, which is calculated by the various chemical mechanisms employed between models. For August some similarity is observed in the distribution of the maximal CO and maximal O<sub>3</sub>, indicating that the source region of reactive nitrogen pre-cursors is the same as for CO. Comparisons with GFEDv2 (not shown) indicate that the sequestration of reactive nitrogen increases in some models allowing more O<sub>3</sub> production away from the main source region when applying the L3JRCv2 emission dataset.

### *Comparisons with observations*

Figure 6 shows a comparison of the seasonal composite for JJA of ozonesondes launched from Cotonou (6.6°N, 2.2°E) on the Nigerian Coast (Thouret et al, 2008) and the corresponding co-located output from some of the participating models. For the calculation of the model profiles only those profiles output on the corresponding launch dates of the measurements are used. It can be clearly seen that MOCAGE has high surface ozone values (by nearly 200% for this location) whereas both LMDZ-INCA and TM4 show better agreement. This is in spite of the enhanced convective activity shown for the Guinea tracer in Figure 2. For the upper troposphere MOCAGE shows the best agreement, although a difference of ~25% still occurs at 200hPa. It is interesting to note that the standard deviation for both LMDZ-INCA and p-TOMCAT is much smaller than that exhibited by the other models suggesting that variability in tropospheric ozone is not as enhanced. Moreover, the profiles of TM4 and LMDZ are remarkably similar considering the difference in vertical resolution and the combination of parameterizations used for the transport of emissions. When comparing the spread in the models shown in Figure 5 it can be seen that at this latitude (6.6°N) the differences between the O<sub>3</sub> values calculated between the models is much less than when considering the O<sub>3</sub> values at more southerly latitudes (5°S). Thus the validation of the models is somewhat limited by the location of the sonde. Therefore we present an additional comparison over a more diverse latitudinal range below.

Figure 7 shows comparisons of interpolated model output against the tropospheric O<sub>3</sub> measurements taken in the flight tracks for the AMMA measurement campaign (with the exception of the M55 measurements), as shown in Janicot et al. (2008). The maximal O<sub>3</sub> concentrations occur in the lower troposphere between 4-7°N at 600-750hpa. Only MOCAGE shows similar concentrations to those measured, although these occur higher up in the troposphere between 300-400hPa. However, MOCAGE also exhibits high surface O<sub>3</sub> values around 5°N (see Figure 6) indicating that the chemical production of O<sub>3</sub> is too efficient. Further analysis using the different periods identified in Mari et al (2008) (not shown) reveals that high values in both CO and O<sub>3</sub> correlate with the South African tracer. Therefore, transport of air-masses across the ITCZ during Summer as simulated in these global CTM's influences atmospheric composition above the AMMA measurement region, as shown in Mari et al (2008) using a regional model.

## ***Conclusions and Outlook***

Here we have briefly shown a sample of the results obtained during the chemistry-transport modelling component of the AMMA-MIP exercise, where our focus has been to exploit the 2D cross-sectional data with the aim of representing the ‘zonality’ of the West African Monsoon. These simulations are the first time the recently developed J3LRCv2 emission dataset has been used, albeit as monthly aggregates. Combining different parameterizations in order to simulate the transport of chemical trace gas species results in significant differences in the transport of air-masses out of the African Continent over the Southern Atlantic Ocean from regions where intensive biomass burning practices occur. In general the models show maximal concentrations around 5°S and tend to miss the high concentrations observed above 5°N. Moreover, the participating models generally overpredict surface ozone and underpredict ozone in the free troposphere when compared to sonde measurements on the West African Coast, which suggests either that the location and/or intensity of the emissions applied in the models is too low, stratospheric intrusions are under-predicted or transport of air from regions which are relatively rich in ozone (or the necessary precursors) is not captured well enough.

In the near future we aim to perform additional simulations where the daily emission files are applied as either weekly aggregates or as a moving average. This fluctuation in emission flux, coupled with improvements in the regional variability, has the potential to significantly improve agreement between the models with a suite of available measurements. Further work is planned which will focus on the long-range transport of (e.g.) CO out across the Southern Atlantic, comparisons between retrieved satellite products for NO<sub>2</sub> and HCHO, MOZAIC flight data and ground-based observations.

## ***Acknowledgements***

JEW acknowledges AMMA-EU for financial support. XY acknowledges AMMA-UK and NCAS for financial support.



<i>Model</i>	Horizontal Resolution (°)	Vertical Levels	Transport Parameterizations	Chemical Mechanism
LMDZ-INCA	2.5° x 3.75°	19	Van Leer (1977) Kerry Emanuel (1991, 1993) Houdin et al (2006)	INCA[1]
MOCAGE	2.0° x 2.0° (0.5° x 0.5° Africa)	47	Williamson and Rasch (1989) Bechtold et al (2001) Louis (1979)	RACM[2] and REPROBUS[3]
TM4	3° x 2°	34	Russel and Learner (1981) Tietke (1989) Holtslag and Boville (1993)/Louis (1979)	Modified CBM4[4]
p-TOMCAT	2.8° x 2.8°	31	Prather (1986) Wang et al. (1999)	ASAD[5]

Table 1: An overview of the model settings and transport parameterisations implemented in the global Chemistry Transport Models participating in the AMMA-MIP intercomparison. The MOCAGE model uses a ‘zoomed’ region over Africa. Further details: (1) Hauglustaine et al. (2004); (2) Stockwell et al. (1998), (3) Lefèvre et al. (1994); (4) Houweling et al. (1998); (5) Carver et al. (1997).

Name of passive tracer	Latitude band	Type
Sahara	20-30°N	Land
Sahel	10-20°N	Land
Guinea	0-10°N	Land
South Africa	0-40°S	Land
South Atlantic	0-40°S	Ocean
Stratosphere	Global	Lower stratosphere

Table 2: A definition of the passive tracers implemented for diagnosing atmospheric transport in the AMMA-MIP intercomparison. All tracers are defined between longitudes of 20°W-40°E and given a fixed lifetime of 20 days, except for the stratospheric tracer which is defined globally above the local tropopause.

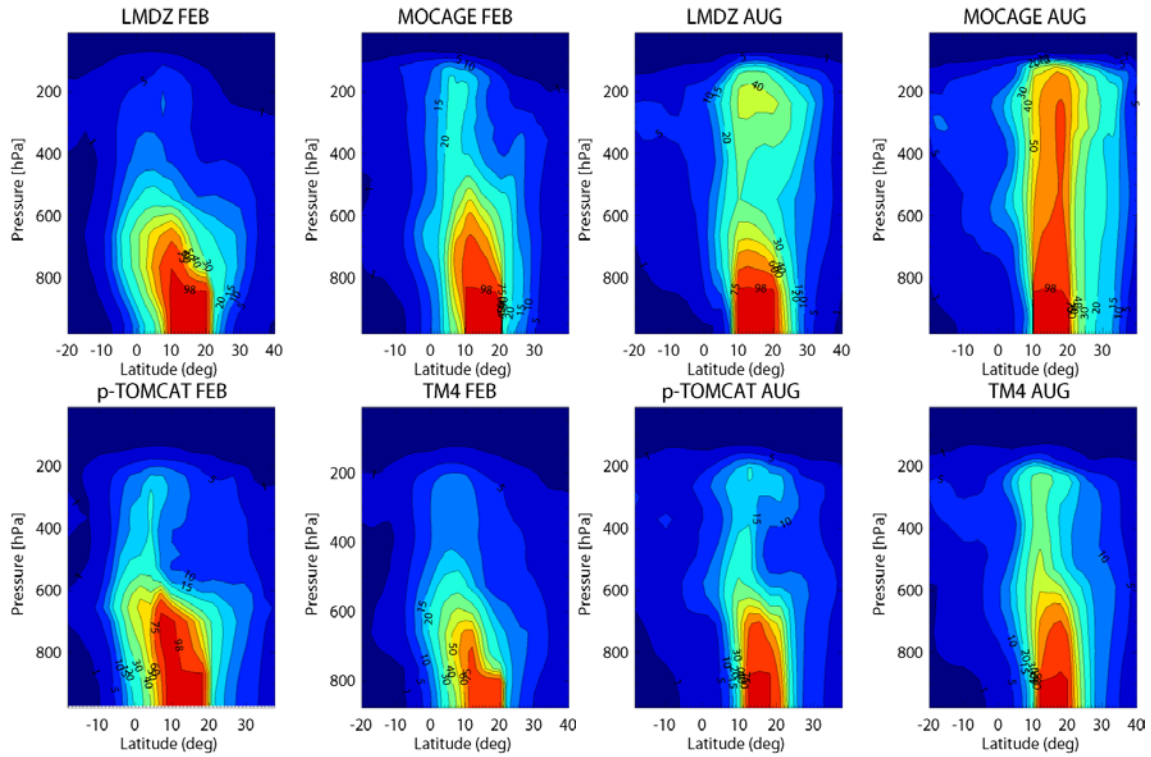


Figure 1: Comparison of the monthly means of the tropospheric distribution of the Sahel passive tracer (10°N-20°N) for February and August 2006, left panels and right panels respectively, as calculated in each of the four participating CTM's within AMMA-MIP.

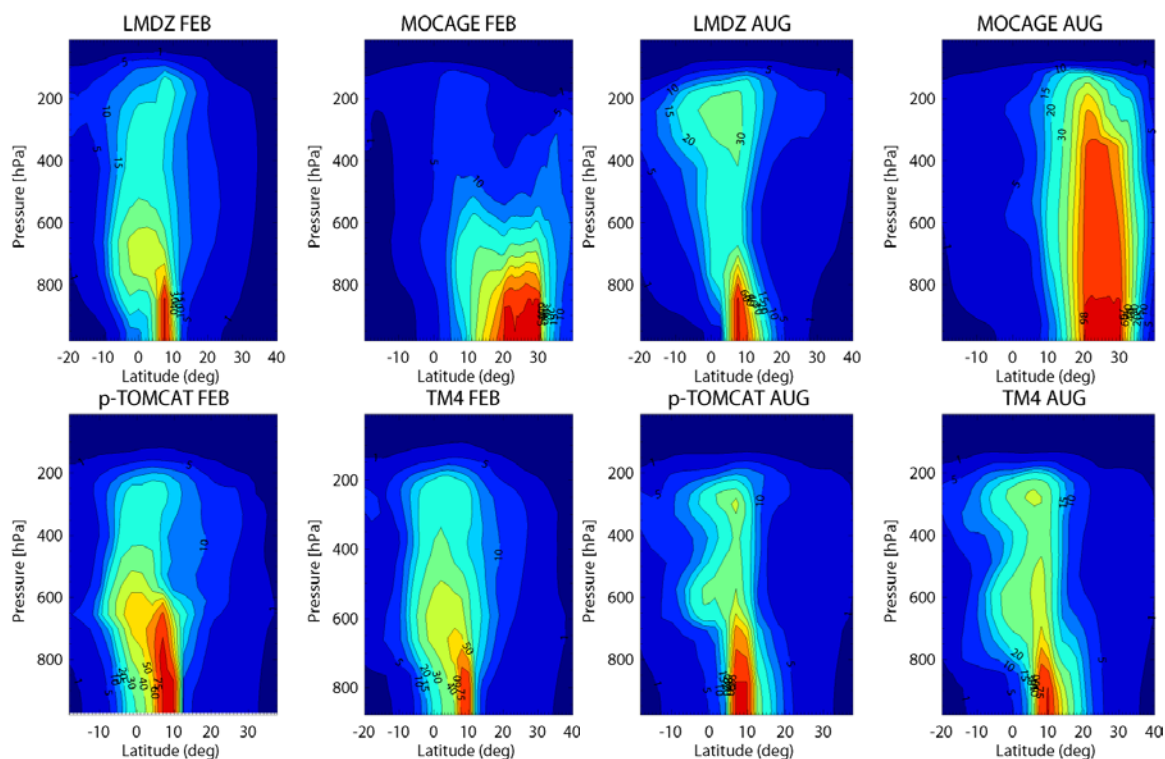


Figure 2: Comparison of the monthly means of the tropospheric distribution of the Guinea passive tracer (0°N-10°N) for February and August, respectively, as calculated in each of the four participating CTM's within AMMA-MIP.

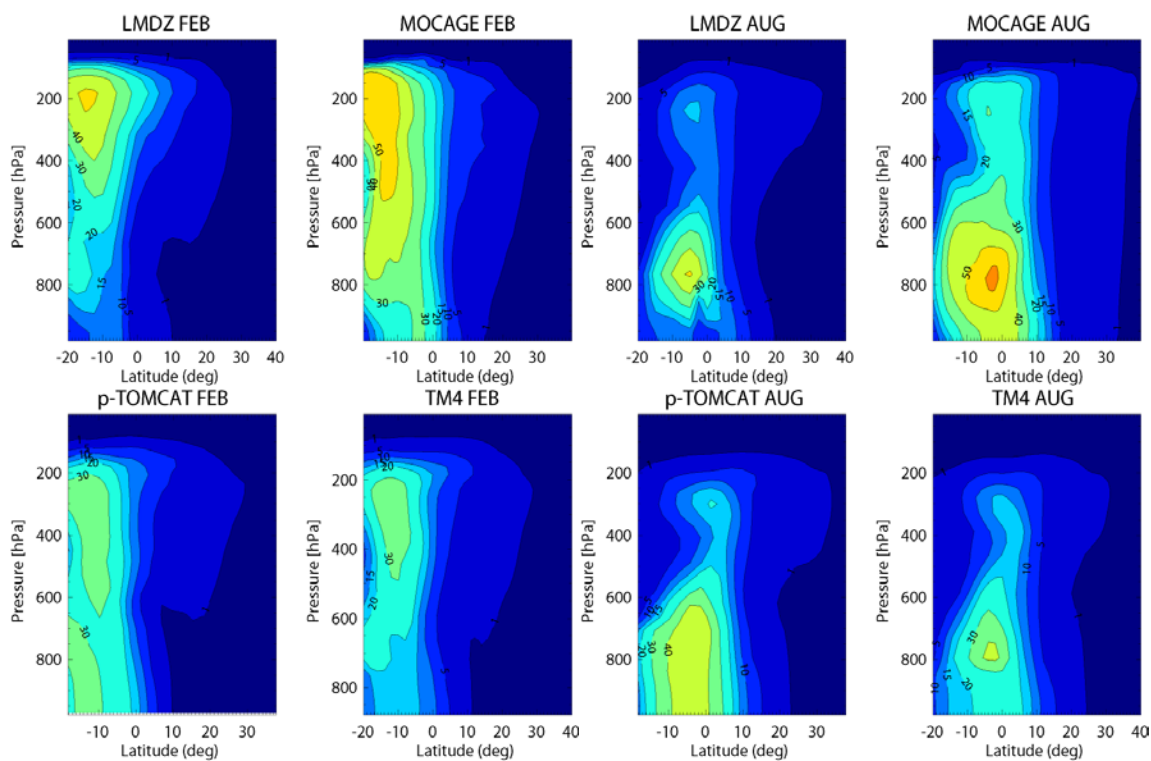


Figure 3: Comparison of the monthly means of the tropospheric distribution of the South African passive tracer ( $40^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{N}$ ) for February and August, respectively, as calculated in each of the four participating CTM's within AMMA-MIP. The 2D cross section does not pass directly over the source region thus the tracer distribution occurs as a result of advection of the West African coast over the Southern Atlantic.

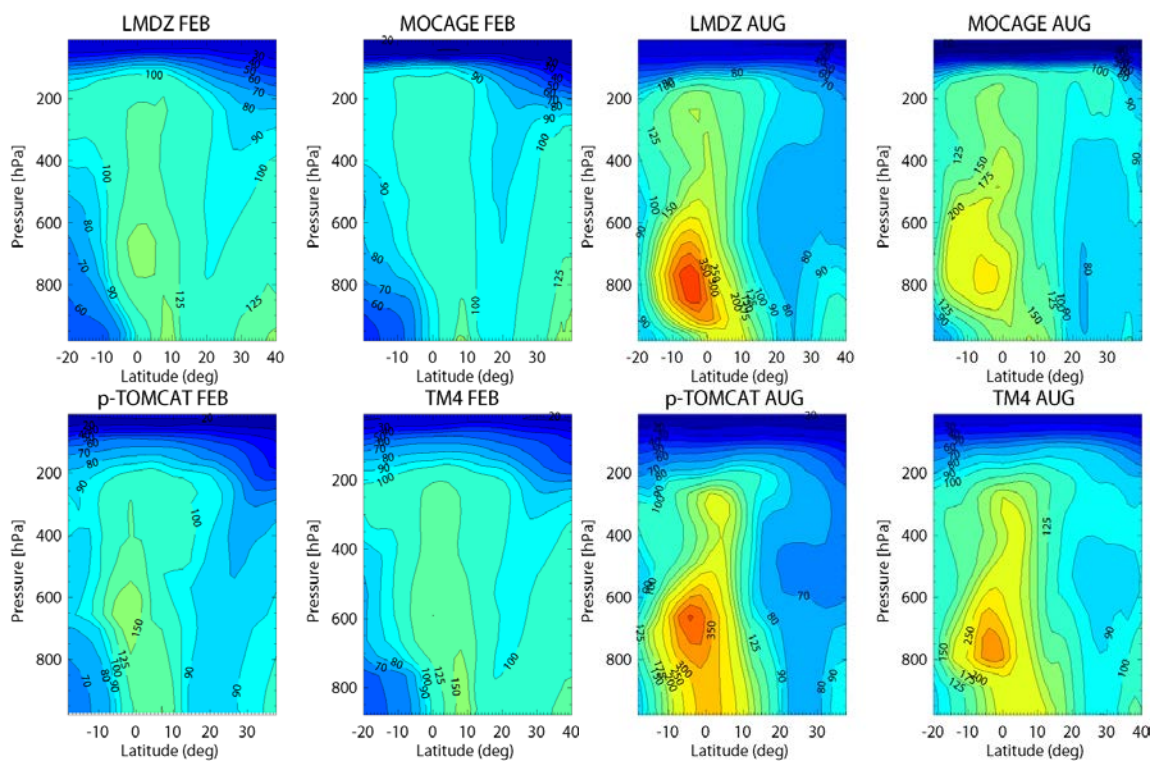


Figure 4: Comparison of the monthly means for CO in ppbv for February and August 2006, respectively, as calculated in each of the four global CTM's within AMMA-MIP. It can be seen that higher concentrations occur during August which correlates with maximal emissions in Central Africa due to intensive biomass burning.

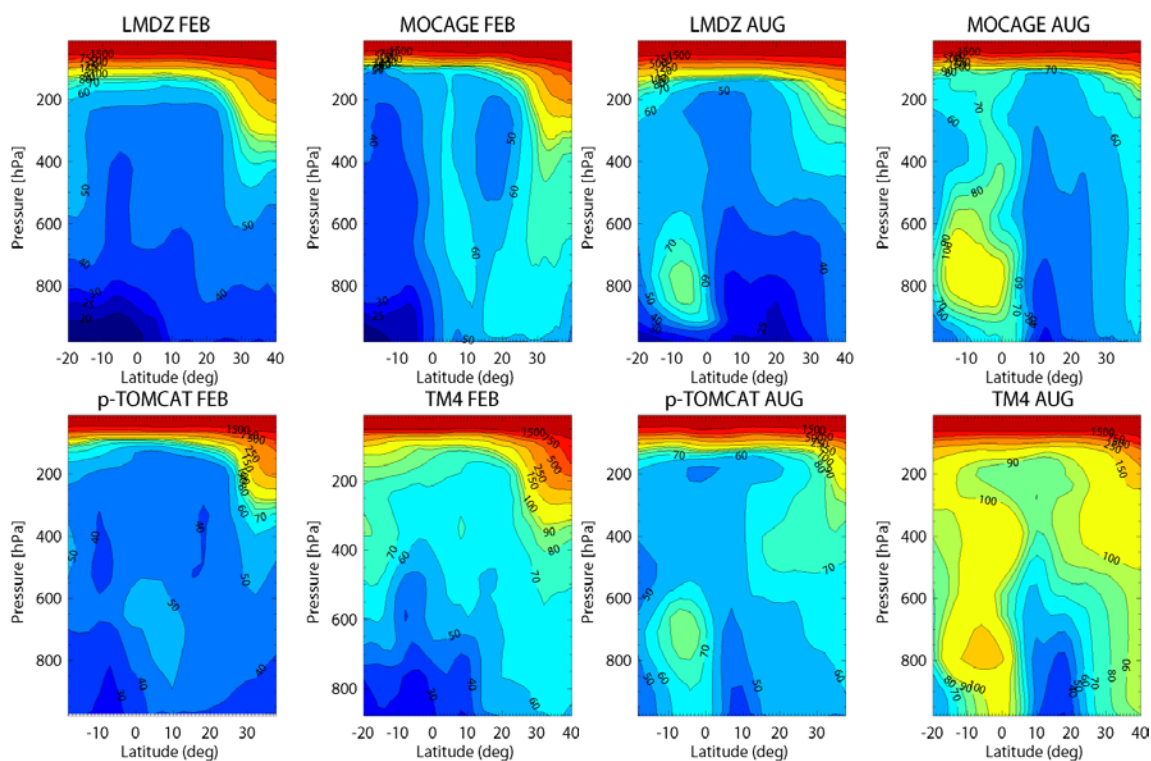


Figure 5: Comparison of the monthly means for O<sub>3</sub> in ppbv for February and August 2006, respectively, as calculated in each of the four global CTM's within AMMA-MIP. The higher concentrations calculated in August are the result of the increased emission, chemical sequestration and transport of NO<sub>2</sub>.

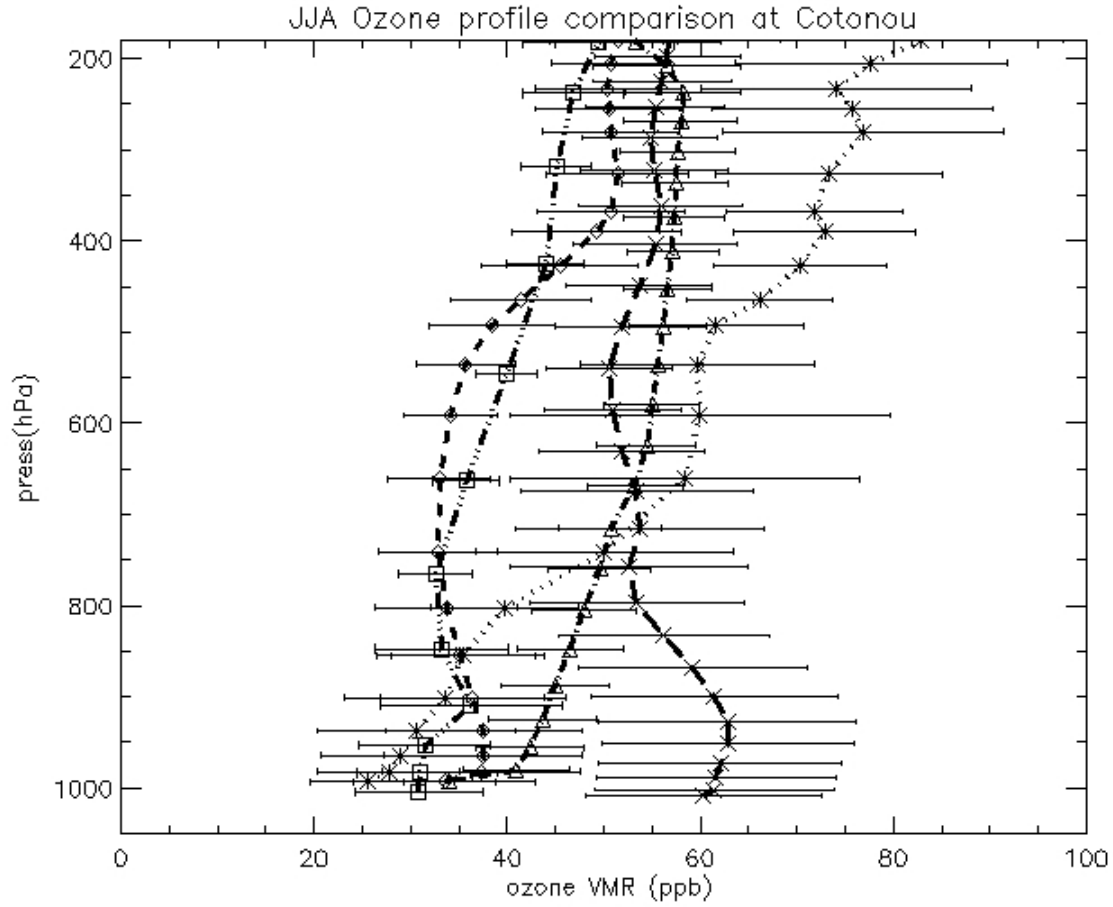


Figure 6: A comparison of ozonesonde measurements taken at Cotonou (6.6°N, 2.2°E) with output from model simulations for JJA in 2006. Symbol key: Observations (\*), LMDZ-INCA ( $\square$ ), TM4 ( $\diamond$ ), MOCAGE (X) and p-TOMCAT ( $\Delta$ ). The errors bars represent 1- $\sigma$  standard deviations for each of the respective datasets.



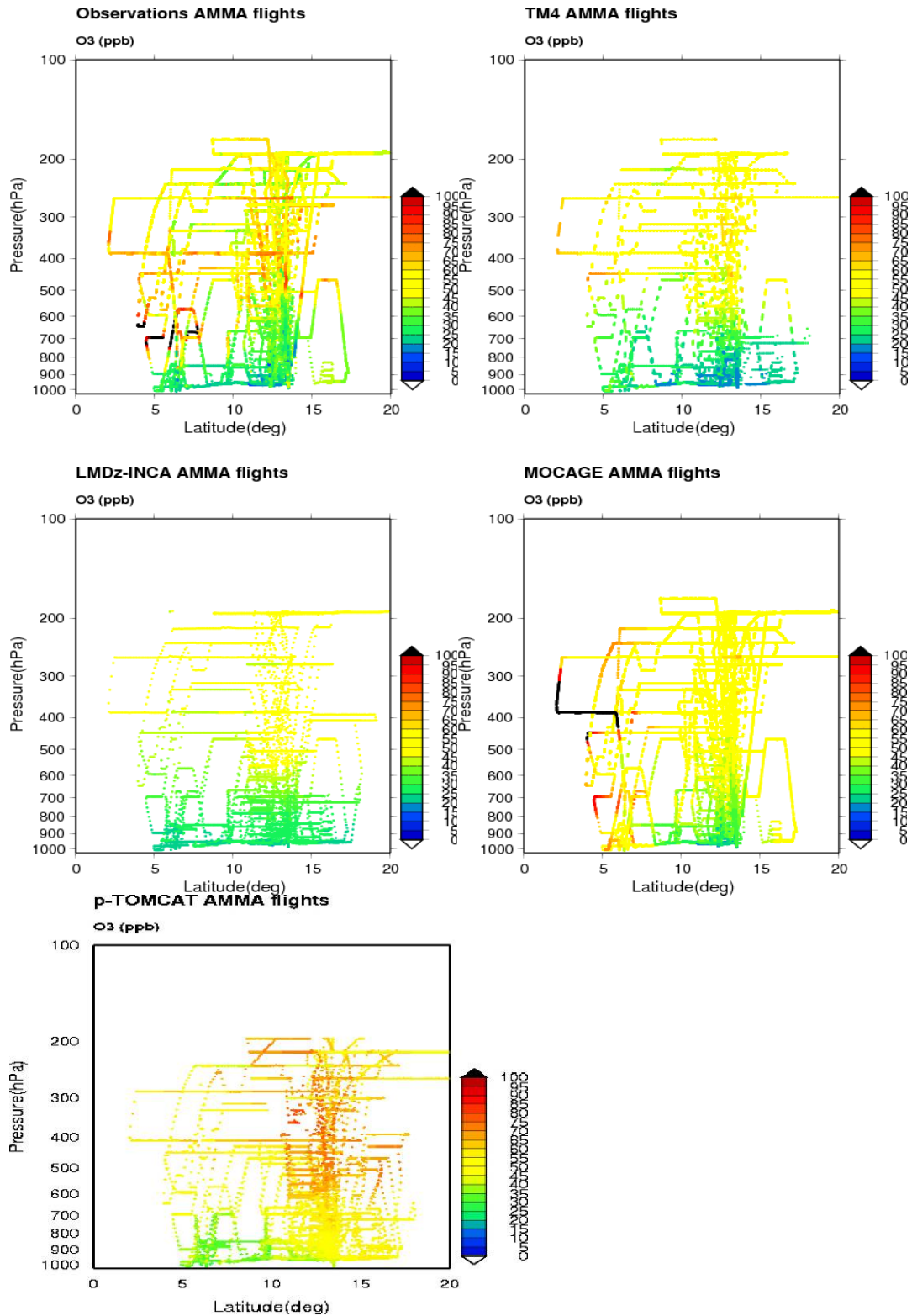


Figure 7: A comparison of composite  $O_3$  measurements taken above Africa with model output from (clockwise) TM4, LMDZ-INCA, p-TOMACAT and MOCAGE ppbv during July and August 2006, respectively. The maximum concentration observed occurs between 4-7°N and is only partially captured by one of the participating models.

## References

- Carver, G. D., P. D. Brown and O. Wild, The ASAD atmospheric chemistry integration package and chemical reaction database, *Comput. Phys. Comm.*, 105, 197-215, 1997.
- Crutzen, P.J. and M. O. Andreae, Biomass burning in the tropics: Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles, *Science*, 250, 1669-1678, 1990.
- Giglio, L., J. Descloitres, C. O. Justice, Y. J. Kaufman, An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS, *Remote Sens. Environ.*, 87(2-3), 273-282, 2003.
- Giglio, L., G. R. van der Werf, J. T. Randerson, G. J. Collatz, and P. S. Kasidhatla, Global estimation of burned area using MODIS active fire observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 957-974, 2006.
- Hauglustaine, D. A., F. Hourdin, L. Jourdain, M.-A. Filiberti, S. Walters, J.-F. Lamarque and E. A. Holland, Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie dynamique general circulation model: Description and background tropospheric chemistry evaluation. *J. Geophys. Res.*, vol. 109, doi:10.1029/2003JD003957, 2004.
- Holtlag, A. A. M. and B. A. Boville, Local versus nonlocal boundary layer diffusion in a global climate model, *J. Clim.*, 6, 1825-1842, 1993.
- Hourdin, F. et al, The LMDZ4 general circulation model: climate performance and sensitivity to parameterized physics with emphasis on tropical convection, *Clim. Dyn.*, 27(7-8), 787-813, 2006.
- Hourdin, F., I. Musat, F. Guichard, P. M. Rutti, F. Favot, M.-A. Filiberti, M. Pham, J.-Y. Grandpeix, P. Marquat, A. Boone, J.-P. Lafore, J.-L. Redelsperger, A. Dell'Aquila, T. L. Doval, A. K. Traore and H. Gallée, AMMA-Model Intercomparison Project, *Bulltin Am. Meteo. Soc.*, This issue.
- Houweling, S., F. J. Dentener and J. Lelieveld, The impact of non-methane hydrocarbon compounds on tropospheric photochemistry, *J. Geophys. Res.*, 103, 10673-10696, doi: 10.1029/97JD03582, 1998.
- Ito, A. and J .E. Penner, Global estimates of biomass burning emissions based on satellite imagery for the year 2000, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 109, doi:10.1029/2003JD004423, 2004.
- Jain, A. K., Global estimation of CO emissions using three sets of satellite data for burned area, *Atmos. Enviro.*, 41, 6931-6940, 2007.
- Janicot, S., and 26 others, Large-scale overview of the summer monsoon over West Africa during the AMMA field experiment in 2006, *Ann. Geophys.*, 26, 2569-2595, 2008.

- Lefèvre, F., G.P. Brasseur, I. Folkins, A.K. Smith, and P. Simon, Chemistry of the 1991-1992 stratospheric winter: three-dimensional model simulations, *J. Geophys. Res.*, 99, 8183-8195, 1994
- Louis, J. F, A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, *Boundary Layer Meteorology*, 17, 182-202, 1979.
- Lioussse, C. M. O. Andreae, P. Artaxo, P. Barbosa, H. Cachier, J. M. Gregorie, P. Hobbs, D. Lavoue, F. Mouillot, J. Penner and M. Scholes, Deriving global quantitative estimates for spatial and temporal distributions of biomass burning emissions, in: Emissions of atmospheric trace compounds, edited by: Granier, C., P. Artaxo and C. Reeves, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 544pp, 2004.
- Mari, C.H., G. Cailley, L. Corre, M. Saunois, J. L. Attié, V. Thouret and A. Stohl, Tracing biomass burning plumes from the Southern Hemisphere during the AMMA 2006 wet season experiment, *Atms. Chem. Phys.*, 8, 3951-3961, 2008.
- Prather, M.J., Numerical advection by conservation of second-order moments, *J. Geophys. Res.*, vol. 91, 6671-6681, 1986.
- Russel, G., and J. Lerner, A new finite-differencing scheme for tracer transport equation, *J. Appl. Meteorol.*, 20, 1483-1498, 1981.
- Sauvage, B., V Thouret, J-P. Cammas, F. Gheusi, G. Athier and P. Nedelec, Tropospheric ozone over Equatorial Africa: regional aspects from the MOZAIC data, *Atms. Chem. Phys.*, 5, 311-335, 2005.
- Sauvage, B., R. V. Martin, A van Donkelaar, X Liu, K. Chance, L. Jaegle, P. I. Palmer, S. Wu and T.-M. Fu, Remote sensed and in-situ constraints on processes affecting tropical tropospheric ozone, *Atms. Chem. Phys.*, 7, 815-838, 2007a.
- Sauvage, B., F. Gheusi, V. Thoret, J-P. Cammas, J. Duron, J. Escobar, C. Mari, P. Mascart and V. Pont, Medium-range mid-tropospheric transport of ozone and precursors over Africa: two numerical case studies in dry and wet seasons, *Atms. Chem. Phys.*, 7, 5357-5370, 2007b.
- Stockwell, W.R., F. Kirchner, M. Kuhn and S. Seefeld, A new mechanism for regional atmospheric modeling, *J. Geophys. Res.*, 104, 25,847-25,879, 1998.
- Thouret, V. et al, Two years of ozone radio soundings over Cotonou in the frame of AMMA: Overview and Case Study, in preparation.
- Tiedtke, M. (1989), A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Weather. Review*, 117, 1779-1800, 1979.

Van der Werf, G. R. , J. T. Randerson, L. Giglio, G. J. Collatz, P. S. Kasibhatla and A. F. Arellano, Jr, Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004, *Atms. Chem. Phys.*, 6, 3423-3441, 2006.

Van Leer, B., Towards the ultimate conservative difference scheme. Part IV: A new approach to numerical convection, *J. Comput. Phys.*, 23, 276-299, 1977.

Van Noije, T. P. C., and 35 others, Multi-model ensemble simulations of tropospheric NO<sub>2</sub> compared with GOME retrievals for the year 2000, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2943-2979, 2006.

Wang, K. Y., J. A. Pyle, M. G. Sandersen, and C. Bridgeman, Implementation of a convective atmospheric boundary layer scheme in a tropospheric chemistry transport model, *J. Geophys. Res.*, 104, 23,729-23,745, 1999.

Williamson, D. L. and P. J. Rasch, Two-dimensional semi-lagrangian transport with shape-preserving interpolation. *Mon. Weather. Rev.*, 117, 102-129, 1989.

# **Bibliographahie**



# Bibliographie

Aghedo, A., M., M. G. Schultz, and S. Rast, 2007: The influence of African air pollution on regional and global tropospheric ozone, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1193-1212.

Andreae, M., O. and P. Merlet, 2001: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochem. Cycles*, 15, 955–966.

Andreae, M., O., 1993: The influence of tropical biomass burning on climate and the atmospheric environment, in: Biogeochemistry of Global Change: Radiatively Active Trace Gases, edited by: Oremland, R. S., *Chapman and Hall, New York*, 113–150.

Andrés-Hernández, M., D., D. Kartal, L. Reichert, J. P. Burrows, J. Meyer Arnek, M. Lichtenstern, P. Stock, and H. Schlager, 2009: Peroxy radical observations over West Africa during AMMA 2006: photochemical activity in the outflow of convective systems, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 3681-3695.

Ancellet, G., J. Leclair de Bellevue, C. Mari, P. Nedelec, A. Kukui, A. Borbon, and P. Perros, 2009: Effects of regional-scale and convective transports on tropospheric ozone chemistry revealed by aircraft observations during the wet season of the AMMA campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 383-411.

Atkinson, R., D. Baulch, R. Cox, R. Hampson, J. Kerr, M. Rossi, J. Troe, 1997: Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry: Supplement VI – IUPAC, *J. Phys. Chem.*, 26, 1125-1568.

Balkanski, Y., D. Jacob, G. Gardner, W. Graustein and K. Turekian, 1993: Transport and Residence Times of Tropospheric Aerosols Inferred from a Global Three-Dimensional Simulation of  $^{210}\text{Pb}$ , *J. Geophys. Res.*, 98(D11), 20573-20586.

Barnola, J-M., M. Anklin, J. Porcheron, D. Raynaud, J. Schwander and B. Stauffer, 1994:  $\text{CO}_2$  evolution during the last millenium as recorded by Antarctic and Greenland ice, *Tellus*, 47B, 264-272.

Barret, B., P. Ricaud, C. Mari, J. -L. Attié, N. Bousserez, B. Josse, E. Le Flochmoën, N.J. Livesey, S. Massart, V.-H. Peuch, A. Piacentini, B. Sauvage, V. Thouret, and J. P. Cammas, 2008: Transport pathways of CO in the African upper troposphere during the monsoon season: a study based upon the assimilation of spaceborne observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3231-3246.

Barret, B., J. E. Williams, I. Bouarar, X. Yang, B. Josse, K. Law, M. Pham, E. Le Flochmoën, C. Lioussé, V. H. Peuch, G. D. Carver, J. A. Pyle, B. Sauvage, P. van Velthoven, H. Schlager, C. Mari, and J.-P. Cammas, 2010: Impact of West African Monsoon convective transport and lightning  $\text{NO}_x$  production upon the upper tropospheric composition: a multi-model study *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5719-5738.



- Bauer, S. E., Y. Balkanski, M. Schulz, D. A. Hauglustaine, and F. Dentener, 2004: Global modeling of heterogeneous chemistry on mineral aerosol surfaces: Influence on tropospheric ozone chemistry and comparison to observations, *J. Geophys. Res.*, 109, D02304, doi:10.1029/2003JD003868.
- Beer, R., 2006: TES on the Aura Mission: Scientific Objectives, Measurements, and Analysis Overview, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sensing*, 44, 1102- 1105.
- Beer, R., T. A. Glavich, and D. M. Rider, 2001: Tropospheric emission spectrometer for the Earth Observing System's Aura satellite, *Applied Optics*, 40, 2356-2367.
- Berthet, G., J. G. Esler, and P. H. Haynes, 2007: A Lagrangian perspective of the tropopause and the ventilation of the lowermost stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 112, D18102, doi:10.1029/2006JD008295.
- Bey, I., D. J. Jacob, R. M. Yantosca, J. A. Logan, B. D. Field, A. M. Fiore, Q. Li, H. Y. Liu, L. J. Mickley, and M. G. Schultz, 2001: Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 106(D19), 23,073-23,095.
- Bock, O., M. N. Bouin, E. Doerflinger, P. Collard, F. Masson, R. Meynadier, S. Nahmani, M. Koite, K. G. L. Balawan, F. Dide, D. Ouedraogo, S. Pokperlaar, J.-B. Ngamini, J. P. Lafore, S. Janicot, F. Guichard, and M. Nuret, 2008: West African Monsoon observed with ground-based GPS receivers during African Monsoon Multidisciplinary Analysis (AMMA), *J. Geophys. Res.*, 113, D21105, doi:10.1029/2008JD010327.
- Bond, D. W., S. Steiger, R. Zhang, X. Tie, and R. E. Orville, 2002: The importance of NO<sub>x</sub> production by lightning in the tropics, *Atmos. Environ.*, 36 (9), 1509-1519.
- Bony, S., and K. A. Emanuel, 2001: A Parameterization of the Cloudiness Associated with Cumulus Convection; Evaluation Using TOGA COARE Data. *J. Atmos. Sci.*, 58, 3158–3183.
- Bousserez, N., J. L. Attie, V. H. Peuch, M. Michou, G. Pfister, D. Edwards, L. Emmons, C. Mari, B. Barret, S. R. Arnold, A. Heckel, A. Richter, H. Schlager, A. Lewis, M. Avery, G. Sachse, E. V. Browell, and J. W. Hair, 2007: Evaluation of the MOCAGE chemistry transport model during the ICARTT/ITOP experiment, *J. Geophys. Res.*, 112, D10S42, doi:10.1029/2006JD007595.
- Bovensmann, H., J. P. Burrows, M. Buchwitz, J. Frerick, S. Noel, V. V. Rozanov, K. V. Chance, and A. P. H. Goede, 1999: SCIAMACHY: Mission objectives and measurement modes, *J. Atmos. Sci.*, 56(2), 127-150.
- Brasseur, G., J.-F. Muller and C. Granier, 1996: Atmospheric impact of NO<sub>x</sub> emissions by subsonic aircraft: A three-dimensional model study, *J. Geophys. Res.*, 101(D1), 1423–1428.
- Brasseur, G., J. Orlando and G. Tyndall, 1999: Atmospheric chemistry and global change, *Tech. rep.*, Oxford University Press, New York, USA.

Brocheton, F., 1999: Représentation des émissions anthropiques dans les modèles globaux de chimie transport : sensibilité à la représentation spatiale des émissions et au degré de raffinement du schéma chimique, *PhD thesis, Université Paris 12 – Val de Marne*.

Burpee, R., W., 1972: Origin and structure of easterly waves in lower troposphere of North Africa, *J. Atmos. Sci.*, 29 (1): 77.

Buzzi, A., M. Fantini, P. Malguzzi, and F. Nerozzi, 1994: Validation of a limited area model in cases of Mediterranean cyclogenesis: Surface fields and precipitation scores, *Meteo. Atmos. Phys.*, 53, 137-153.

Christian, H. J., R. J. Blakeslee, S. J. Goodman, D. A. Mach, M. F. Stewart, D. E. Buechler, W. J. Koshak, J. M. Hall, W. L. Boek, K. T. Driscoll, and D. J. Boccippio, 1999: The Lightning Imaging Sensor, in: Proceedings of the 11th International Conference on Atmospheric Electricity, Guntersville, Alabama, 7–11 June , 746–749.

Christian, H. J., R. J. Blakeslee, D. J. Boccippio, W. L. Boeck, D. E. Buechler, K. T. Driscoll, S. J. Goodman, J. M. Hall, W. J. Koshak, D. M. Mach, and M. F. Stewart, 2003: Global frequency and distribution of lightning as observed from space by the Optical Transient Detector, *J. Geophys. Res.*, 108, 4005, doi: 10.1029/2002JD002347.

Chipperfield, M.P., and P. Simon, 1996: The TOMCAT online transport model. Part II. Dynamics and advection, *UGAMP Internal Report 44b*, Reading, UK.

Corbett, J., P. Fishbeck, and S. Pandis, 1999: Global nitrogen and sulphur inventories for oceangoing ships, *J. Geophys. Res.*, 104, 3457–3470.

Collins W. J., R. G. Derwent, B. Garnier, C. E. Johnson, M. G. Sanderson, and D. S. Stevenson, 2003: Effect of stratosphere-troposphere exchange on the future tropospheric ozone trend, *J. Geophys. Res.*, 108 (D12), 8528, doi:10.1029/2002JD002617.

Creilson, J. K., J. Fishman, and A. E. Wozniak, 2003: Intercontinental transport of tropospheric ozone: a study of its seasonal variability across the North Atlantic utilizing tropospheric ozone residuals and its relationship to the North Atlantic Oscillation, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 2053-2066.

Crutzen, P. J. and M. O. Andreae, 1990: Biomass burning in the tropics: Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles, *Science*, 250, 1669–1678.

Davolio, S., A. Buzzi, and P. Malguzzi, 2009: Orographic triggering of long lived convection in three dimensions, *J. Atmos. Sci.*, 103 (1-4): 35-44.

DeCaria, A. J., K. E. Pickering, G. L. Stenchikov, and L. E. Ott, 2005: Lightning-generated NO<sub>x</sub> and its impact on tropospheric ozone production: A three-dimensional modeling study of a Stratosphere-Troposphere Experiment: Radiation, Aerosols and Ozone (STERAO-A) thunderstorm, *J. Geophys. Res.*, 110(D14), D14303, doi:10.1029/2004JD005556.

Deeter M. N., L. K. Emmons, D. P. Edwards, J. C. Gille, and J. R. Drummond, 2004: Vertical resolution and information content of CO profiles retrieved by MOPITT, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L15112, doi:10.1029/2004GL020235.

Deeter M. N., L. K. Emmons, G.L. Francis, D. P. Edwards, J. C. Gille, J. X. Warner, B. Khatatov, D. Ziskin, J. F. Lamarque, S. P. Ho, V. Yudin, J. L. Attie, D. Packman, J. Chen, D. Mao, and J. R. Drummond, 2003: Operational carbon monoxide retrieval algorithm and selected results for the MOPITT instrument, *J. Geophys. Res.*, 108 (D14), 4399, doi:10.1029/2002JD003186.

DeFries, R.S., and J.R.G. Townshend, 1994: NDVI-derived land cover classifications at a global scale, *International Journal of Remote Sensing*, 15, 3567-3586.

Déqué, M., C. Drevet, A. Braun, and D. Cariolle, 1994: The ARPEGE/IFS atmosphere model: a contribution to the French community climate modelling, *Climate Dynamics*, 10, 4-5, 249-266.

Delon, C., C. E. Reeves, D. J. Stewart, D. Serça, R. Dupont, C. Mari, J.-P. Chaboureaud, and P. Tulet, 2008: Biogenic nitrogen oxide emissions from soils - impact on NO<sub>x</sub> and ozone over West Africa during AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Experiment): modelling study, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2351-2363.

DeMore, W., S. Sander, D. Golden, R. Hampson, M. Kurylo, C. Howard, A. Ravishankara, C. Kolb, and M. Molina, 1997: Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modelling, evaluation number 12, NASA Panel for Data Evaluation, *JPL Publications*, 97-4.

Dentener, F., M. van Weele, M. Krol, S. Houweling, and P. van Velthoven, 2003: Trends and inter-annual variability of methane emissions derived from 1979-1993 global CTM simulations. *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 73-88.

Dentener F., J. Drevet, J. F. Lamarque, I. Bey, B. Eickhout, A. M. Fiore, D. Hauglustaine, L. W. Horowitz, M. Krol, U. C. Kulshrestha, M. Lawrence, C. Galy-Lacaux, S. Rast, D. Shindell, D. Stevenson, T. Van Noije, C. Atherton, N. Bell, D. Bergman, T. Butler, J. Cofala, B. Collins, R. Doherty, K. Ellingsen, J. Galloway, M. Gauss, V. Montanaro, J. F. Mueller, G. Pitari, J. Rodriguez, M. Sanderson, F. Solmon, S. Strahan, M. Schultz, K. Sudo, and O. Wild, O., 2006: Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: A multimodel evaluation, *Global Biogeochem. Cycles*, 20, GB4003.

Doherty, R. M., D. S. Stevenson, W. J. Collins, and M. G. Sanderson, 2005: Influence of convective transport on tropospheric ozone and its precursors in a chemistry-climate model, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 3205-3218.

Drummond J. R., and G. S. Mand, 1996: The measurements of pollution in the troposphere (MOPITT) instrument: Overall performance and calibration requirements. *J. Atmos. Ocean. Technol.*, 13:314-320.

Dufresne J.-L., P. Friedlingstein, M. Berthelot, L. Bopp, P. Ciais, L. Fairhead, H. Le Treut, and P. Monfray, 2002: On the magnitude of positive feedback between future climate change and the carbon cycle, *Geophys. Res. Lett.*, 29 (10), 1405, doi:10.1029.

Emanuel, K. A., 1991: A Scheme for Representing Cumulus Convection in Large-Scale Models. *J. Atmos. Sci.*, 48, 2313-2329.

Emanuel, K. A., 1993: A cumulus representation based on the episodic mixing model: the importance of mixing and microphysics in predicting humidity, *AMS Meteorol. Monogr.* 24(46):185–192.

Emmons, L. K., M. N. Deeter, J. C. Gille, D. P. Edwards, J.-L. Attie, J. Warner, D. Ziskin, G. Francis, B. Khattatov, V. Yudin, J.-F. Lamarque, S.-P. Ho, D. Mao, J. S. Chen, J. Drummond, P. Novelli, G. Sachse, M. T. Coffey, J. W. Hannigan, C. Gerbig, S. Kawakami, Y. Kondo, N. Takegawa, H. Schlager, J. Baehr, and H. Ziereis, 2004: Validation of Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) CO retrievals with aircraft in situ profiles, *J. Geophys. Res.*, 109, D03309, doi:10.1029/2003JD004101.

Emmons, L. K., G. G. Pfister, D. P. Edwards, J. C. Gille, G. Sachse, D. Blake, S. Wofsy, C. Gerbig, D. Matross, and P. Nédélec, 2007: Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) validation exercises during summer 2004 field campaigns over North America, *J. Geophys. Res.*, 112, D12S02, doi:10.1029/2006JD007833.

Emmons, L. K., D. P. Edwards, M. N. Deeter, J. C. Gille, T. Campos, P. Nédélec, P. Novelli, and G. Sachse, 2009: Measurements of Pollution In The Troposphere (MOPITT) validation through 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1795-1803.

Etheridge, D. M, G. I. Pearman, P. J. Fraser, 1992: Changes in tropospheric methane between 1841 and 1789 from a high accumulation rate antarctic ice core, *Tellus Series B-Chem. Phys. Met.*, 44 (4): 282-294.

Evans, M. J., D. E. Shallcross, K. S. Law, J. O. F. Wild, P. G. Simmonds, T. G. Spain, P. Berrisford, J. Methven, A. C. Lewis, J. B. McQuaid, M. J. Pilling, B. J. Bandy, S. A. Penkett, J. A. Pyle, 2000: Evaluation of a Lagrangian box model using field measurements from EASE (Eastern Atlantic Summer Experiment) 1996, *Atmos. Environ.*, 34, 3843-3863.

Fehsenfeld, F., J. Calvert, R. Fall, P. Goldan, A. B. Guenther, C. N. Hewitt, B. Lamb, S. Liu, M. Trainer, H. Westberg, and P. Zimmerman, 1992: Emissions of volatile organic compounds from vegetation and the implications for atmospheric chemistry, *Global Biogeochemical Cycles*, 6, 389–430.

Fishman, J., C. Watson, J. Larsen, and J. Logan, 1990: Distribution of Tropospheric Ozone Determined From Satellite Data, *J. Geophys. Res.*, 95(D4), 3599-3617.

Fishman, J., J. M. Hoell Jr., R. D. Bendura, R. J. McNeal., and V. W. J. H. Kirchhoff, 1996: NASA GTE TRACE-A experiment (September–October 1992): Overview, *J. Geophys. Res.*, 101, 23 865–23 879.

Fishman, J., and V. Brackett, 1997: The climatological distribution of tropospheric ozone derived from satellite measurements using version 7 Total Ozone Mapping Spectrometer and Stratospheric Aerosol and Gas Experiment data sets, *J. Geophys. Res.*, 102(D15), 19275-19278.

Fishman, J., A. E. Wozniak, J. K. and Creilson, 2003: Global distribution of tropospheric ozone from satellite measurements using the empirically corrected tropospheric ozone residual technique: Identification of the regional aspects of air pollution, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 893-907.

Folberth, G. A., D. A. Hauglustaine, J. Lathière, and F. Brocheton, 2005: Impact of biogenic hydrocarbons on tropospheric chemistry: results from a global chemistry-climate model, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 5, 10517-10612.

Folberth, G. A., D. A. Hauglustaine, J. Lathière, and F. Brocheton, 2006: Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model: model description and impact analysis of biogenic hydrocarbons on tropospheric chemistry, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2273-2319.

Folkins, I., R. Chatfield, D. Baumgardner, and M. Proffitt, 1997: Biomass burning and deep convection in southeastern Asia: Results from ASHOE/MAESA, *J. Geophys. Res.*, 102, 13 291–13 299.

Folkins, I., C. Braun, A. M. Thompson, and J. Witte, 2002a: Tropical ozone as an indicator of deep convection, *J. Geophys. Res.*, 107 (D13), 4184, doi:10.1029/2001JD001178.

Folkins, I., K. K. Kelly, and E. M. Weinstock, 2002b: A simple explanation for the increase in relative humidity between 11 and 14 km in the tropics, *J. Geophys. Res.*, 107 (D23), 4736, doi:10.1029/2002JD002185.

Forget, F., F. Hourdin, R. Fournier, C. Hourdin, O. Talagrand, M. Collins, S. R. Lewis, P. L. Read, and J.-P. Huot, 1999: Improved general circulation models of the Martian atmosphere from the surface to above 80 km, *J. Geophys. Res.*, 104:24155–24176.

Fouquart, Y., and B. Bonnel, 1980: Computations of solar heating of the Earth's atmosphere: a new parametrization, *Contrib. Atmos. Phys.*, 53:35–62

Friedlingstein, P., L. Bopp, P. Ciais, J.-L. Dufresne, L. Fairhead, H. LeTreut, P. Monfray, and J. Orr, 2001: Positive Feedback between Future Climate Change and the Carbon Cycle, *Geophys. Res. Lett.*, 28(8), 1543-1546.

Fu, R., Y. L. Hu, J. S. Wright, J. H. Jiang, R. E. Dickinson, M. X. Chen, M. Filipiak, W. G. Read, J. W. Waters, D. L. Wu, 2006: Short circuit of water vapour and polluted air to the global stratosphere by convective transport over the Tibetan Plateau, *Proc. Natl. Acad. Sci., USA.*, 103, 5664–5669.

Galloway, J. N., F. J. Dentener, D. G. Capone, E. W. Boyer, R. W. Howarth, S. P. Seitzinger, G. P. Asner, C. C. Cleveland, P. A. Green, E. A. Holland, D. M. Karl, A. F. Michaels, J. H. Porter, A. R. Townsend, and C. J. Vorosmarty, 2004: Nitrogen cycles: past, present, and future, *Biogeochemistry*, 70, 153-226.

Galy-Lacaux, C., D. Laouali, L. Descroix, N. Gobron, and C. Lioussé, 2009: Long term precipitation chemistry and wet deposition in a remote dry savanna site in Africa (Niger), *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1579-1595.

Gardner, R., K. Adams, T. Cook, F. Deidewig, S. Ernedal, R. Falk, E. Fleuti, E. Herms, C. E. Johnson, M. Lecht, D. S. Lee, M. Leech, D. Lister, B. Masse, M. Metcalfe, P. Newton, A. Schmitt, C. Vandenberg, and R. VanDrimmelen, 1998: ANCAT/EC2 global aircraft emission inventories for 1991/92 and 2015: Report by the ECAC/ANCAT and EC Working Group, *Tech. rep., Def. Eval. and Res. Agency*, Farnborough, UK.

Garstang, M., P. D. Tyson, R. Swap, M. Edwards, P. Kallberg, and J. A. Lindesay, 1996: Horizontal and vertical transport of air over southern Africa, *J. Geoph. Res.*, 101, 23721-23736.

Giglio, L., G. R. van der Werf, J. T. Randerson, G. J. Collatz, and P. Kasibhatla, 2006: Global estimation of burned area using MODIS active fire observations, *Atmos. Chem. and Phys.*, 6, 957-974.

Giorgi, F., and W. Chameides, 1985: The Rainout Parameterization in a Photochemical Model, *J. Geophys. Res.*, 90(D5), 7872-7880.

Goldenbaum, G., and R. Dickerson, 1993: Nitric Oxide Production by Lightning Discharges, *J. Geophys. Res.*, 98(D10), 18333-18338.

Grandpeix, J.-Y., V. Phillips, and R. Tailleux, 2004: Improved mixing representation in Emanuel's convection scheme, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 130:3207-3222.

Grandpeix, J.-Y., 2009 : Représentation de la convection profonde dans les modèles globaux de climat, *Journées scientifiques ICARE*, 8-9 octobre.

Granier, C., W.M. Hao, G. Brasseur, and J-F. Müller, 1996: Land-use practices and biomass burning: Impact on the chemical composition of the atmosphere. In *Biomass Burning and Global Change*, 1, chapter 14 (ed) J. S. Levine, pp.140-148, MIT Press.

Guenther, A., C. N. Hewitt, D. Erickson, R. Fall, C. Geron, T. Graedel, P. Harley, L. Klinger, M. Lerdau, W. A. McKay, T. Pierce, B. Scholes, R. Steinbrecher, R. Tallamraju, J. Taylor, and P. Zimmerman, 1995: A global model of natural volatile organic compound emissions, *J. Geophys. Res.*, 100, 8873-8892.

Guenther, A., T. Karl, P. Harley, C. Wiedinmyer, P. I. Palmer, and C. Geron, 2006: Estimates of the global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181-3210.

Guibert, S., V. Matthias, M. Schulz, J. Bösenberg, R. Eixmann, I. Mattis, G. Pappalardo, M. R. Perrone, N. Spinelli, and G. Vaughan, 2005: The vertical distribution of aerosol over Europe - synthesis of one year of EARLINET aerosol lidar measurements and aerosol transport modeling with LMDzT-INCA, *Atmos. Envi.*, 16, 2933-2943.

Harzallah, A., and R. Sadouny, 1995: Interna versus sst-forced atmospheric variability as simulated by an atmospheric general circulation mode, *J. of Climate*, 8, 3, 474-495.

Hauglustaine, D. A., F. Hourdin, L. Jourdain, M.-A. Filiberti, S. Walters, J.-F. Lamarque, and E. A. Holland, 2004: Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model: description and background tropospheric chemistry evaluation, *J. Geophys. Res.* 109:4314-4357.

Höller, H., H.-D. Betz, K. Schmidt, R. V. Calheiros, P. May, E. Houngninou, and G. Scialom, 2009 : Lightning characteristics observed by a VLF/LF lightning detection network (LINET) in Brazil, Australia, Africa and Germany, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7795-7824.

Holton, J., P. Haynes, M. McIntyre, A. Douglass, R. Rood, and L. Pfister, 1995: Stratosphere-Troposphere Exchange, *Rev. Geophys.*, 33(4), 403-439.

Horowitz, L. W., D. L. Mauzerall, L. K. Emmons, P. J. Rasch, C. Granier, X. X. Tie, J. F. Lamarque, M. G. Schultz, G. S. Tyndall, J. J. Orlando, and G. P. Brasseur, 2003 : A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2, *J. Geophys. Res.*, 108(D24), 4784, doi:10.1029/2002JD002853.

Hourdin, F., P. Le Van, F. Forget, and O. Talagrand, 1993: Meteorological variability and the annual surface pressure cycle on Mars, *J. Atmos. Sci.*, 50:3625–3640.

Hourdin, F., O. Talagrand, R. Sadourny, C. Régis, D. Gautier, and D. McKay, 1995: General circulation of the atmosphere of Titan. *Icarus*, 117:358–374.

Hourdin, F., and A. Armengaud, 1999: The use of finite-volume methods for atmospheric advection of trace species. Part i: test of various formulations in a general circulation model, *Mon. Weather. Rev.*, 127:822–837.

Hourdin, F., F. Couvreux, and L. Menut, 2002: Parameterization of the dry convective boundary layer based on a mass flux representation of thermals, *J. of the Atmos. Sci.*, 59, 6, 1105-1123.

Hourdin, F., I. Musat, S. Bony, P. Braconnot, F. Codron, J. L. Dufresne, L. Fairhead, M. A. Filiberti, P. Friedlingstein, J. Y. Grandpeix, G. Krinner, P. Levan, Z. X. Li, and F. Lott, 2006: The LMDZ4 general circulation model: climate performance and sensitivity to parametrized physics with emphasis on tropical convection, *Climate Dynamics*, 27 (7-8), 787-813.

Huntrieser, H., C. Feigl, H. Schlager, F. Schroder, C. Gerbig, P. van Velthoven, F. Flatøy, C. Thery, A. Petzold, H. Holler, and U. Schumann, 2002: Airborne measurements of NO<sub>x</sub>, tracer species, and small particles during the European Lightning Nitrogen Oxides Experiment, *J. Geophys. Res.*, 107, 4113, doi:10.1029/2000JD000209.

Huntrieser, H., J. Heland, H. Schlager, C. Forster, A. Stohl, H. Aufmhoff, F. Arnold, H. E. Scheel, M. Campana, S. Gilge, R. Eixmann, and O. Cooper, 2005: Intercontinental air pollution transport from North America to Europe: Experimental evidence from airborne measurements and surface observations, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 110 (D1): Art. No. D01305.

Huntrieser, H., H. Schlager, A. Roiger, M. Lichtenstern, U. Schumann, C. Kurz, D. Brunner, C. Schwierz, A. Richter, and A. Stohl, 2007: Lightning-produced NO<sub>x</sub> over Brazil during TROCCINOX: airborne measurements in tropical and subtropical thunderstorms and the importance of mesoscale convective systems, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2987-3013.

Jaeglé, L., D. J. Jacob, P. O., Wennberg, C. M. Spivakovsky, T. F. Hanisco, E. J. Lanzendorf, E. J. Hints, D. W. Fahey, E. R. Keim, M. H. Proffitt, E. L. Atlas, F. Flocke, S. Schauffler, C. T. McElroy, C. Midwinter, and L. Pfister, 1997: Observed OH and HO<sub>2</sub> in the upper troposphere suggest a major source from convective injection of peroxides, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 3181–3184.



Jaeglé, L., D. J. Jacob, W. H. Brune, and P. O. Wennberg, 2001: Chemistry of HOx radicals in the upper troposphere, *Atmospheric Environment*, 35, 469–489.

Jaeglé, L., R. V. Martin, K. Chance, L. Steinberger, T. P. Kurosu, D. J. Jacob, A. I. Modi, V. Yoboué, L. Sigha-Nkamdjou, and C. Galy-Lacaux, 2004: Satellite mapping of rain-induced nitric oxide emissions from soils, *J. Geophys. Res.*, 109, D21310, doi:10.1029/2004JD004787.

Jaeglé, L., L. Steinberger, R. V. Martin, and K. Chance, 2005: Global partitioning of NOx sources using satellite observations: Relative roles of fossil fuel combustion, biomass burning and soil emissions, *Faraday Discussions*, 130, 407–423.

Janicot, S., C. D. Thorncroft, A. Ali, N. Asencio, G. Berry, O. Bock, B. Bourles, G. Caniaux, F. Chauvin, A. Deme, L. Kergoat, J.-P. Lafore, C. Lavaysse, T. Lebel, B. Marticorena, F. Mounier, P. Nedelec, J.-L. Redelsperger, F. Ravegnani, C. E. Reeves, R. Roca, P. de Rosnay, H. Schlager, B. Sultan, M. Tomasini, A. Ulanovsky, Group Author(s): ACMAD Forecasters Team, 2008: Large-scale overview of the summer monsoon over West Africa during the AMMA field experiment in 2006, *Ann. Geo.*, 26, 2569–2595.

Jenkins, G. S., K. Mohr, V. R. Morris, and O. Arino, 1997: The role of convective processes over the Zaire-Congo Basin to the southern hemispheric ozone maximum, *J. Geophys. Res.*, 102, 18 963–18 980.

Jonquière, I., A. Marenco, A. Maalej, and F. Rohrer, 1998: Study of ozone formation and transatlantic transport from biomass burning emissions over West Africa during the airborne tropospheric ozone campaigns TROPOZ I and TROPOZ II, *J. Geophys. Res.*, 103, 19 059–19 073.

Jonquière, I., and A. Marenco, 1998: Redistribution by deep convection and long-range transport of CO and CH<sub>4</sub> emissions from the Amazon basin, as observed by the airborne campaign TROPOZ II during the wet season, *J. Geophys. Res. Atm.*, 103 (D15): 19075–19091.

Jourdain, L. and D. A. Hauglustaine, 2001: The global distribution of lightning NOx simulated on-line in a general circulation model, *Phys. Chem. Earth*, 26(8), 585–591.

Jourdain, L., H. M. Worden, J. R. Worden, K. Bowman, Q. Li, A. Eldering, S. S. Kulawik, G. Osterman, K. F. Boersma, B. Fisher, C. P. Rinsland, R. Beer, and M. Gunson, 2007: Tropospheric vertical distribution of tropical Atlantic ozone observed by TES during the northern African biomass burning season, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L04810, doi:10.1029/2006GL028284.

Kesselmeier, J., and M. Staudt, 1999: Biogenic Volatile Organic Compounds (VOC): An Overview on Emission, Physiology and Ecology, *J. of Atm. Chem.*, 33, 23–88.

Krinner, G., N. Viovy, N. de Noblet-Ducoudré, J. Ogée, J. Polcher, P. Friedlingstein, P. Ciais, S. Sitch, I. C. Prentice, 2005: A dynamic global vegetation model for studies of the coupled atmosphere-biosphere system, *Global Biogeochem. Cycles*, 19, GB1015, doi:10.1029/2003GB002199.

Labrador, L., R. von Kuhlmann, M. G. and Lawrence, 2004: Strong sensitivity of the global mean OH concentration and the tropospheric oxidizing efficiency to the source of NO<sub>x</sub> from lightning, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L06 102, doi:10.1029/20 003GL019 229.

Labrador, L. J., R. von Kuhlmann, and M. G. Lawrence, 2005: The effects of lightning-produced NO<sub>x</sub> and its vertical distribution on atmospheric chemistry: sensitivity simulations with MATCH-MPIC, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1815-1834.

Labonne, M., F. M. Breon, and F. Chevallier, 2007: Injection height of biomass burning aerosols as seen from a spaceborne lidar, *Geophys. Res. Lett.*, 34 (11).

Lathière, J., D. A. Hauglustaine, N. De Noblet-Ducoudre, G. Krinner, and G. A. Folberth, 2005: Past and future changes in biogenic volatile organic compound emissions simulated with a global dynamic vegetation model, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L20818, doi:10.1029/2005GL024164.

Lathière, J., D. A. Hauglustaine, A. D. Friend, N. De Noblet-Ducoudré, N. Viovy, and G. A. Folberth, 2006: Impact of climate variability and land use changes on global biogenic volatile organic compound emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2129-2146.

Law, K., P. Plantevin, D. Shallcross, H. Rogers, J. Pyle, C. Grouhel, V. Thouret, and A. Marenco, 1998: Evaluation of modeled O<sub>3</sub> using Measurement of Ozone by Airbus In-Service Aircraft (MOZAIC) data, *J. Geophys. Res.*, 103(D19), 25721-25737.

Law, K., P.-H. Plantevin, V. Thouret, A. Marenco, W. Asman, M. Lawrence, P. Crutzen, J.-F. Muller, D. Hauglustaine, and M. Kanakidou, 2000: Comparison between global chemistry transport model results and Measurement of Ozone and Water Vapor by Airbus In-Service Aircraft (MOZAIC) data, *J. Geophys. Res.*, 105(D1), 1503-1525.

Law, K. S., F. Fierli, F. Cairo, H. Schlager, S. Borrmann, M. Streibel, E. Real, D. Kunkel, C. Schiller, F. Ravagnani, A. Ulanovsky, F. D'Amato, S. Viciani, and C. M. Volk, 2010: Air mass origins influencing the chemical composition of tropical tropopause layer (TTL) over West Africa, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10753-10770.

Lawrence, M.G., 2004: Export of air pollution from southern Asia and its large-scale effects, *Intercontinental Transport Of Air Pollution*, 4, 131-172.

Lelieveld, J. and P. J. Crutzen, 1994: Role of deep cloud convection in the ozone budget of the troposphere, *Science*, 264(5166), 1759–1761.

Le Treut, H., Z. Li, and M. Forichon, 1994: Sensitivity of the LMD General Circulation Model to Greenhouse Forcing Associated with Two Different Cloud Water Parameterizations, *J. Climate*, 7, 1827- 1841.

Le Treut, H., M. Forichon, O. Boucher, and Z.X. Li, 1998: Sulfate Aerosol Indirect Effect and CO<sub>2</sub> Greenhouse Forcing: Equilibrium Response of the LMD GCM and Associated Cloud Feedbacks. *J. Climate*, 11, 1673- 1684.

Levy, H., 1971: Normal Atmosphere: Large Radical and Formaldehyde Predicted, *Science*, 173, 141-143.

- Li, Q., D. J. Jacob, I. Bey, P. I. Palmer, B. N. Duncan, B. D. Field, R. V. Martin, A. M. Fiore, R. M. Yantosca, D. D. Parrish, P. G. Simmonds, and S. J. Oltmans, 2002a: Transatlantic transport of pollution and its effects on surface ozone in Europe and North America, *J. Geophys. Res.*, 107 (D13), 4166, doi:10.1029/2001JD001422.
- Li, Q., D. J. Jacob, T. D. Fairlie, H. Liu, R. V. Martin, and R. M. Yantosca, 2002b: Stratospheric versus pollution influences on ozone at Bermuda: Reconciling past analyses, *J. Geophys. Res.*, 107 (D22), 4611, doi:10.1029/2002JD002138.
- Li, Q., J. H. Jiang, D. L. Wu, W. G. Read, N. J. Livesey, J. W. Waters, Y. S. Zhang, B. Wang, M. J. Filipiak, C. P. Davis, S. Turquety, S. L. Wu, R. J. Park, R. M. Yantosca, D. J. Jacob, 2005: Convective outflow of South Asian pollution: A global CTM simulation compared with EOS MLS observations, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L14826, doi:10.1029/2005GL022762.
- Liebmann, B., and C. A. Smith, 1996: Description of a complete (interpolated) outgoing longwave radiation dataset, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 77, 1275-1277.
- Liousse, C., B. Guillaume, J. M. Grégoire, M. Mallet, C. Galy, V. Pont, A. Akpo, M. Bedou, P. Castéra, L. Dungall, E. Gardrat, C. Granier, A. Konaré, F. Malavelle, A. Mariscal, A. Mieville, R. Rosset, D. Serça, F. Solmon, F. Tummon, E. Assamoi, V. Yoboué, and P. Van Velthoven, 2010: Updated African biomass burning emission inventories in the framework of the AMMA-IDAF program, with an evaluation of combustion aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 9631-9646.
- Lott, F., L. Fairhead, F. Hourdin and P. Levan, 2005: The stratospheric version of LMDz: dynamical climatologies, arctic oscillation, and impact on the surface climate, *Clim. Dyn.*, 25:851–868.
- Lott, F., and M. Miller, 1997: A new sub-grid scale orographic drag parametrization: its formulation and testing, *Q. J. R. Met. Soc.*, 123:101–128.
- Lott, F., 1999: Alleviation of stationary biases in a GCM through a mountain drag parametrization scheme and a simple representation of mountain lift forces, *Mon. Weather Rev.*, 127:788–801.
- Louis, J. F., 1979: A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, *Boundary Layer Meteorol.*, 17:187–202.
- Malguzzi, P., G. Grossi, A. Buzzi, R. Ranzi, and R. Buizza, 2006: The 1966 century flood in Italy: A meteorological and hydrological revisitation, *J. Geophys. Res.*, 111, D24106.
- Marécal, V., E. D. Riviere, G. Held, S. Cautenet, S. Freitas, 2006: Modelling study of the impact of deep convection on the utls air composition - Part I: Analysis of ozone precursors, *Atm. Chem. and Phys.*, 6: 1567-1584.
- Marenco, A., V. Thouret, P. Nedelec, H. Smit, M. Helten, D. Kley, F. Karcher, P. Simon, K. Law, J. Pyle, G. Poschmann, R. Von Wrede, C. Hume, and T. Cook, 1998: Measurement of ozone and water vapor by Airbus in-service aircraft: The MOZAIC airborne program, An overview, *J. Geophys. Res.*, 103(D19), 25631-25642.

Mari, C., D. J. Jacob, P. and Bechtold, 2000: Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, *J. Geophys. Res.*, 105, 22 255–22 267.

Mari, C., C. Säüt, D. J. Jacob, A. Staudt, M. A. Avery, W. H. Brune, I. Faloon, B. G. Heikes, G. W. Sachse, S. T. Sandholm, H. B. Singh, and D. Tan, 2003: On the relative role of convection, chemistry, and transport over the South Pacific Convergence Zone during PEM-Tropics B: A case study, *J. Geophys. Res.*, 107, 8232, doi:10.1029/2001JD001466.

Mari, C., and J. Prospero, 2005: African Monsoon Multidisciplinary Analysis-Atmospheric Chemistry (AMMA-AC): a new IGAC task; *IGAC Activities Newsletter*, 31, 2–13.

Mari, C. H., G. Cailley, L. Corre, M. Saunois, J. L. Attié, V. Thouret, and A. Stohl, 2008: Tracing biomass burning plumes from the Southern Hemisphere during the AMMA 2006 wet season experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3951–3961.

Marufu, L, F. Dentener, J. Lelieveld, M. O. Andreae, and G. Helas, 2000: Photochemistry of the African troposphere: Influence of biomass-burning emissions, *J. of Geophys. Res. Atm.*, 105 (D11): 14513-14530.

Mathon, V., and H. Laurent, 2001: Life cycle of the Sahelian mesoscale convective cloud systems. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 127, 377–406.

Mathon V., A. Diedhiou, and H. Laurent, 2002a: Relationship between easterly waves and mesoscale convective systems over the Sahel, *Geophys. Res. Lett.*, 29 (8), 1216, doi:10.1029/2001GL014371.

Mathon, V., H. Laurent, and T. Lebel, 2002b: Mesoscale Convective System Rainfall in the Sahel, *J. Appl. Meteor.*, 41, 1081-1092.

Mesinger, F. and A. Arakawa, 1976 : Numerical Methods used in Atmospheric Models, in *GARP Publication Series*, vol. 1, p. 66.

Meyer-Arnek, J., A. Ladstätter-Weissenmayer, A. Richter, F. Wittrock, and J. P. Burrows, 2005: A study of the trace gas columns of O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub> and HCHO over Africa in September 1997, *Faraday Discuss.*, 130, 387–405, doi:10.1039/b502106p.

Michel, C., C. Lioussé, J.-M. Grégoire, K. Tansey, G. R. Carmichael, and J.-H. Woo, 2005: Biomass burning emission inventory from burnt area data given by the SPOT-VEGETATION system in the frame of TRACE-P and ACE-Asia campaigns, *J. Geophys. Res.*, 110, D09304, doi:10.1029/2004JD005461.

Miyazaki, Y., K. Kita, Y. Kondo, M. Koike, M. Ko, W. Hu, S. Kawakami, D. R. Blake, and T. Ogawa, 2002: Springtime photochemical ozone production observed in the upper troposphere over east Asia, *J. Geophys. Res.*, 107, 8398, doi:10.1029/2001JD000811.

Mlawer, E. J., S. J. Taubman, P. D. Brown, M. J. Iacono, and S. A. Clough, 1997: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave, *J. of Geophys. Resea. Atmos.*, 102, D14, 16663-16682.

- Mocrette, J.-J., 1991: Radiation and Cloud Radiative Properties in the European Centre for Medium Range Weather Forecasts Forecasting System, *J. Geophys. Res.*, 96(D5), 9121-9132.
- Nedelec, P., V. Thouret, J. Brioude, B. Sauvage, J. P. Cammas, A. Stohl, 2005: Extreme CO concentrations in the upper troposphere over northeast Asia in June 2003 from the in situ MOZAIC aircraft data, *Geophys. Res. Lett.*, 32 (14).
- Nesme-Ribes, E., E. Ferreira, R. Sadourny, H. Le Treut, and Z. Li, 1993: Solar Dynamics and Its Impact on Solar Irradiance and the Terrestrial Climate, *J. Geophys. Res.*, 98(A11), 18923-18935.
- Nganga, D., A. Minga, B. Cros, C. Biona, J. Fishman, and W. Grant, 1996: The vertical distribution of ozone measured at Brazzaville, Congo during TRACE A, *J. Geophys. Res.*, 101(D19), 24095-24103.
- Nicholson, S. E. and J. Grist, 2003: The seasonal evolution of the atmospheric circulation over West Africa and Equatorial Africa, *J. Clim.*, 16, 1013-1030.
- Olivier, J.G.J., and J.J.M. Berdowski, 2001: Global emissions sources and sinks. In: Berdowski, J., Guicherit, R. and B.J. Heij (eds.), "The Climate System", pp. 33-78. A.A. Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands.
- Olivier, J., A. Bouwman, C. van der Maas, J. Berdowski, C. Veldt, J. Bloos, A. Visschedijk, P. Zandveld, and J. Haverlag, 1996: Description of edgar version 2.0: A set of global emission inventories of greenhouse gases and ozone-depleting substances for all anthropogenic and most natural sources on a per country basis and on a 1x1 degree grid, RIVM report, 771060 002/TNO-MEP report R96/119, National Institute of Public Health and the Environment.
- Olson, J., J. Fishman, V. Kirchhoff, D. Nganga, and B. Cros, 1996: Analysis of the distribution of ozone over the southern Atlantic region, *J. Geophys. Res.*, 101(D19), 24083-24093.
- Park, M., W. J. Randel, A. Gettelman, S. T. Massie, and J. H. Jiang, 2007: Transport above the Asian summer monsoon anticyclone inferred from Aura Microwave Limb Sounder tracers, *J. Geophys. Res.*, 112, D16309, doi:10.1029/2006JD008294.
- Penner, J. E., D. J. Bergmann, J. J. Walton, D. Kinnison, M. J. Prather, D. Rotman, C. Price, K. E. Pickering, and S. L. Baughcum, 1998: An evaluation of upper troposphere NO<sub>x</sub> with two models. *J. Geophys. Res.* 103, D17, doi:10.1029/98JD01565.
- Peyrillé, P., J. P. Lafore, and J. L. Redelsperger, 2007: An Idealized Two-Dimensional Framework to Study the West African Monsoon. Part I: Validation and Key Controlling Factors. *J. Atmos. Sci.*, 64, 2765–2782.
- Pickering, K. E., A. M. Thompson, R. R. Dickerson, W. T. Lucke, D. P. McNamara, J. P. Greenberg, and P. R. Zimmerman, 1990: Model-calculations of tropospheric ozone production potential following observed convective events, *J. Geophys. Res. Atm.*, 95 (D9): 14049-14062.

Pickering, K., Y. Wang, W.-K. Tao, C. Price, and J.-F. Müller 1998: Vertical distributions of lightning NO<sub>x</sub> for use in regional and global chemical transport models, *J. Geophys. Res.*, 103(D23), 31203-31216.

Pielke, R. A., W. R. Cotton, R. L. Walko, C. J. Tremback, W. A. Lyons, L. D. Grasso, M. E. Nicholls, M. D. Moran, D. A. Wesley, T. J. Lee, and J. H. Copeland, 1992: A comprehensive meteorological modeling system – RAMS, *Meteorol. Atmos. Phys.*, 49, 69–91.

Pressman, J., and P. Warneck, 1970: The Stratosphere as a Chemical Sink for Carbon Monoxide, *J. Atmos. Sci.*, 27, 155-163.

Price, C., and D. Rind, 1992: A Simple Lightning Parameterization for Calculating Global Lightning Distributions, *J. Geophys. Res.*, 97(D9), 9919-9933.

Price, C., and D. Rind, 1993: What determines the cloud to ground lightning fraction in thunderstorms?, *Geophys. Res. Lett.*, 20(6), 463-466.

Rannou, P., F. Montmessin, F. Hourdin, and S. Lebonnois, 2006: The Latitudinal Distributions of Clouds on Titan, *Science*, 311, 201-205.

Real, E., K. S. Law, B. Weinzierl, M. Fiebig, A. Petzold, O. Wild, J. Methven, S. Arnold, A. Stohl, H. Huntrieser, A. Roiger, H. Schlager, D. Stewart, M. Avery, G. Sachse, E. Browell, R. Ferrare, and D. Blake, 2007: Processes influencing ozone levels in Alaskan forest fire plumes during long-range transport over the North Atlantic, *J. Geophys. Res.*, 112, D10S41, doi:10.1029/2006JD007576.

Real, E., E. Orlandi, K. S. Law, F. Fierli, D. Josset, F. Cairo, H. Schlager, S. Borrmann, D. Kunkel, C. M. Volk, J. B. McQuaid, D. J. Stewart, J. Lee, A. C. Lewis, J. R. Hopkins, F. Ravagnani, A. Ulanovski, and C. Lioussé, 2010: Cross-hemispheric transport of central African biomass burning pollutants: implications for downwind ozone production, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 3027-3046.

Reeves, C. E., P. Formenti, C. Afif, G. Ancellet, J.-L. Attié, J. Bechara, A. Borbon, F. Cairo, H. Coe, S. Crumeyrolle, F. Fierli, C. Flamant, L. Gomes, T. Hamburger, C. Jambert, K. S. Law, C. Mari, R. L. Jones, A. Matsuki, M. I. Mead, J. Methven, G. P. Mills, A. Minikin, J. G. Murphy, J. K. Nielsen, D. E. Oram, D. J. Parker, A. Richter, H. Schlager, A. Schwarzenboeck, and V. Thouret, 2010: Chemical characterisation of the West Africa Monsoon during AMMA, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7575-7601.

Ricaud, P., B. Barret, J.-L. Attié, E. Motte, E. Le Flochmoën, H. Teyssède, V.-H. Peuch, N. Livesey, A. Lambert, and J.-P. Pommereau, 2007: Impact of land convection on troposphere-stratosphere exchange in the tropics, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5639-5657.

Richter, A., J. P. Burrows, H. Nuss, C. Granier, and U. Niemeier, 2005: Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space, *NATURE*, 437(7055), 129-132.

Richter, A. and J. P. Burrows, 2002: Tropospheric NO<sub>2</sub> from GOME measurements, *Adv. Space Res.*, 29, 1673-1683.

- Ridley, B., J. Walega, J. Dye, and F. Grahek, 1994: Distributions of NO, NO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub>, and O<sub>3</sub> to 12 km altitude during the summer monsoon season over New Mexico, *J. Geophys. Res.*, 99(D12), 25519-25534.
- Rio, C., and F. Hourdin, 2008: A Thermal Plume Model for the Convective Boundary Layer: Representation of Cumulus Clouds. *J. Atmos. Sci.*, 65, 407–425.
- Riviere, E. D., V. Marecal, N. Larsen, and S. Cautenet, 2006: Modelling study of the impact of deep convection on the UTLS air composition - Part 2: Ozone budget in the TTL, *Atm. Chem. and Phys.*, 6: 1585-1598.
- Roca, R., P. de Rosnay, H. Schlager, B. Sultan, M. Tomasini, A. Ulanovsky, and ACMAD forecasters team, 2008: Large-scale overview of the summer monsoon over West Africa during the AMMA field experiment in 2006, *Ann. Geophys.*, 26, 2569-2595.
- Rodgers, C. D., and B. J. Connor, 2003: Intercomparison of remote sounding instruments, *J. Geophys. Res.*, 108 (D3), 4116, doi:10.1029/2002JD002299.
- Sadourny, R., and K. Laval, 1984: January and July performance of the LMD general circulation model, in new Perspectives in Climate Modelling, edited by A. Berger and C. Nicolis, pp. 173-198, Elsevier Sci., New York.
- Sanderson, M. G., W. J. Collins, R. G. Derwent, and C. E. Johnson, 2003: Simulation of global hydrogen levels using a Lagrangian three-dimensional model, *J. Atmos. Chem.*, 46, 15–28.
- Sauvage, B., V. Thouret, J.-P. Cammas, F. Gheusi, G. Athier, and P. Nédélec, 2005: Tropospheric ozone over Equatorial Africa: regional aspects from the MOZAIC data, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 311-335.
- Sauvage, B., V. Thouret, J.-P. Cammas, J. Brioude, P. Nédélec, C. Mari, 2007a: Meridional ozone gradients in the African upper troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L03817, doi:10.1029/2006GL028542.
- Sauvage, B., R. V. Martin, A. van Donkelaar, J. R. Ziemke, 2007b: Quantification of the factors controlling tropical tropospheric ozone and the South Atlantic maximum, *J. Geophys. Res.*, 112, D11309, doi:10.1029/2006JD008008.
- Sauvage, B., F. Gheusi, V. Thouret, J.-P. Cammas, J. Duron, J. Escobar, J., C. Mari, P. Mascart, and V. Pont, 2007c: Medium-range mid-tropospheric transport of ozone and precursors over Africa: two numerical case studies in dry and wet seasons, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5357-5370.
- Saunois, M., C. Mari, V. Thouret, J. P. Cammas, P. Peyrillé, J. P. Lafore, B. Sauvage, A. Volz-Thomas, P. Nédélec, and J. P. Pinty, 2008: An idealized two-dimensional approach to study the impact of the West African monsoon on the meridional gradient of tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, 113, D07306, doi:10.1029/2007JD008707.



Saunois, M., C. E. Reeves, C. H. Mari, J. G. Murphy, D. J. Stewart, G. P. Mills, D. E. Oram, and R. M. Purvis, 2009: Factors controlling the distribution of ozone in the West African lower troposphere during the AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis) wet season campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6135-6155.

Schulz, M., C. Textor, S. Kinne, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, T. Berglen, O. Boucher, F. Dentener, S. Guibert, I. S. A. Isaksen, T. Iversen, D. Koch, A. Kirkevåg, X. Liu, V. Montanaro, G. Myhre, J. E. Penner, G. Pitari, S. Reddy, O. Seland, P. Stier, and T. Takemura, 2006: Radiative forcing by aerosols as derived from the AeroCom present-day and pre-industrial simulations, *Atm. Chem. Phys.*, 6:5225-5246.

Semazzi, F.H., B. Burns, N.H. Lin, and J.K. Schemm, 1996: A MCG study of teleconnections between the continental climate of Africa and global sea surface temperatures anomalies. *J. Climate*, 9(10).

Semazzi, F.H., and L. Sun, 1997: The role of orography in determining the Sahelian climate, *Int. J. Climat.*, 17, 581-596.

Seinfeld, J. and S. Pandis, 1998: Atmospheric chemistry and Physics, *Wiley-interscience*.

Shindell, D. T., G. Faluvegi, D. S. Stevenson, M. C. Krol, L. K. Emmons, J. F. Lamarque, G. Petron, F. J. Dentener, K. Ellingsen, M. G. Schultz, O. Wild, M. Amann, C. S. Atherton, D. J. Bergmann, I. Bey, T. Butler, J. Cofala, W. J. Collins, R. G. Derwent, R. M. Doherty, J. Drevet, J. H. Eskes, A. M. Fiore, M. Gauss, D. A. Hauglustaine, L. W. Horowitz, I. S. A. Isaksen, M. G. Lawrence, V. Montanaro, J.-F. Mueller, G. Pitari, M. J. Prather, J. Pyle, S. Rast, J. M. Rodriguez, M. G. Sanderson, N. H. Savage, S. E. Strahan, K. Sudo, N. Unger, T. P. C. van Noije, S. Szopa, G. Zeng, 2006: Multimodel simulations of carbon monoxide: Comparison with observations and projected near-future changes, *J. Geophys. Res.*, 111, D19306, doi:10.1029/2006JD007100.

Sinha, P., L. Jaeglé, P. V. Hobbs, Q. Liang, 2004: Transport of biomass burning emissions from southern Africa, *J. Geophys. Res.*, 109, D20204, doi:10.1029/2004JD005044.

Stevenson, D. S., F. J. Dentener, M. G. Schultz, K. Ellingsen, T. P. C. van Noije, O. Wild, G. Zeng, M. Amann, C. S. Atherton, N. Bell, D. J. Bergmann, I. Bey, T. Butler, J. Cofala, W. J. Collins, R. G. Derwent, R. M. Doherty, J. Drevet, H. J. Eskes, A. M. Fiore, M. Gauss, D. A. Hauglustaine, L. W. Horowitz, I. S. A. Isaksen, M. C. Krol, J. F. Lamarque, M. G. Lawrence, V. Montanaro, J. F. Muller, G. Pitari, M. J. Prather, J. A. Pyle, S. Rast, J. M. Rodriguez, M. G. Sanderson, N. H. Savage, D. T. Shindell, S. E. Strahan, K. Sudo, and S. Szopa, 2006: Multimodel ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, 111, D08301, doi:10.1029/2005JD006338.

Stewart, D. J., C. M. Taylor, C. E. Reeves, and J. B. McQuaid, 2008: Biogenic nitrogen oxide emissions from soils: impact on NO<sub>x</sub> and ozone over west Africa during AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis): observational study, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2285-2297.

Stockwell, D. Z., C. Giannakopoulos, P. H. Plantevin, G. D. Carver, M. P. Chipperfield, K. S. Law, Y. A. Pyle, D. E. Shallcross, K. Y. Wang, 1999a: Modelling NO<sub>x</sub> from lightning and its impact on global chemical fields, *Atmos. Environ.*, 33 (27): 4477-4493.

Stockwell, D. Z., and M. P. Chipperfield, 1999b: A tropospheric chemical-transport model: Development and validation of the model transport schemes, *Q. J. of the Royal Met. Society*, 125 (557): 1747-1783 Part A.

Stohl, A., M. Hittenberger, and G. Wotawa, 1998: Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data, *Atmos. Environ.*, 32, 4245-4264.

Stohl, A., C. Forster, A. Frank, P. Seibert, and G. Wotawa, 2005: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2461-2474.

Sultan, B. and S. Janicot, 2003: The West African monsoon dynamics. Part II: The “pre-onset” and “the onset” of the summer monsoon, *J. Climate*, 16, 3407-3427.

Teyssedre, H., M. Michou, H. L. Clark, B. Josse, F. Karcher, D. Olivié, V.-H. Peuch, D. Saint-Martin, D. Cariolle, J.-L. Attié, P. Nédélec, P. Ricaud, V. Thouret, R. J. van der A, A. Volz-Thomas, F. and Chéroux, 2007: A new tropospheric and stratospheric Chemistry and Transport Model MOCAGE-Climat for multi-year studies: evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5815-5860.

Thompson, A. M., J. C. Witte, S. J. Oltmans, F. J. Schmidlin, J. A. Logan, M. Fujiwara, V.W.J.H. Kirchhoff, F. Posny, C.J.R. Coetzee, B. Hoegger, S. J. Kawakami, T. Ogawa, J.P.F. Fortuin, H.M. Kelder, 2003: Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998-2000 tropical ozone climatology 1. Comparison with Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) and ground-based measurements, *J. Geophys. Res.*, 108 (D2), 8238, doi:10.1029/2001JD000967.

Thorncroft, C. D. and M. Blackburn, 1999: On the maintenance of the African Easterly Jet, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 125, 763-786.

Thornton, F., P. Pier, and R. Valente, 1997a: NO emissions from soils in the southeastern United States, *J. Geophys. Res.*, 102(D17), 21189-21195.

Thornton, D., A. Bandy, B. Blomquist, J. Bradshaw, and D. Blake, 1997b: Vertical transport of sulfur dioxide and dimethyl sulfide in deep convection and its role in new particle formation, *J. Geophys. Res.*, 102(D23), 28501-28509.

Thouret, V., M. Saunois, A. Minga, A. Mariscal, B. Sauvage, A. Soleté, D. Agbangla, P. Nédélec, C. Mari, C. E. Reeves, H. Schlager, 2009: An overview of two years of ozone radio soundings over Cotonou as part of AMMA, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6157-6174.

Tiedtke, M., 1989: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Weather Rev.*, 117:1179-180.

Tie, X., A. Guenther, and E. Holland, 2003: Biogenic methanol and its impacts on tropospheric oxidants, *Geophys. Res. Lett.*, 30(17), 1881, doi:10.1029/2003GL017167.

Tomasini, M., J. P. Lafore, C. Piriou, R. Roca, K. Ramage, H. Laurent, C. Morel, and S. Senesi, 2006: Atlas on a climatology of West African Mesoscale Convective Systems, AMMA European Deliverable.

Tost, H., P. Jockel, and J. Lelieveld, 2006: Influence of different convection parameterisations in a GCM, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5475–5493.

Tost, H., P. Jöckel, and J. Lelieveld, 2007: Lightning and convection parameterisations - uncertainties in global modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4553–4568.

Turquety, S., C. Clerbaux, K. S. Law, P.-F. Coheur, A. Cozic, S. Szopa, D. A. Hauglustaine, J. Hadji-Lazaro, A. M. S. Gloudemans, H. Schrijver, C. D. Boone, P. F. Bernath, and D. P. Edwards, 2008: CO emission and export from Asia: an analysis combining complementary satellite measurements (MOPITT, SCIAMACHY and ACE-FTS) with global modeling, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 5187–5204.

Van der Werf, G. R., J. T. Randerson, G. J. Collatz, and L. Giglio, 2003: Carbon emissions from fires in tropical and subtropical ecosystems, *Global Change Biology*, 9, 547–562.

Van der Werf, G. R., J. T. Randerson, G. J. Collatz, L. Giglio, P. S. Kasibhatla, A. F. Arellano, Jr., S. C. Olsen, and E. S. Kasischke, 2004: Continental scale partitioning of fire emissions during the 1997 to 2001 El Nino/La Nina period, *Science*, 303, 73–76.

Van der Werf, G. R., J. T. Randerson, L. Giglio, G. J. Collatz, P. S. Kasibhatla, A. F. Arellano, 2006: Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3423–3441.

Van Leer, B., 1977: Towards the ultimate conservative difference scheme: IV, A new approach to numerical convection, *J. Comput. Phys.* 23:276–299

Van Noije, T. P. C., H. J. Eskes, M. van Weele, P. F. J. van Velthoven, 2004: Implications of the enhanced Brewer-Dobson circulation in European Centre for Medium-Range Weather Forecasts reanalysis ERA-40 for the stratosphere-troposphere exchange of ozone in global chemistry transport models, *J. Geophys. Res.*, 109, D19308, doi:10.1029/2004JD004586.

Van Noije, T. P. C., H. J. Eskes, F. J. Dentener, D. S. Stevenson, K. Ellingsen, M. G. Schultz, O. Wild, M. Amann, C. S. Atherton, D. J. Bergmann, I. Bey, K. F. Boersma, T. Butler, J. Cofala, J. Drevet, A. M. Fiore, M. Gauss, D. A. Hauglustaine, L. W. Horowitz, I. S. A. Isaksen, M. C. Krol, J.-F. Lamarque, M.G. Lawrence, R.V. Martin, V. Montanaro, J.-F. Müller, G. Pitari, M. J. Prather, J. A. Pyle, A. Richter, J. M. Rodriguez, N. M. Savage, S. E. Strahan, K. Sudo, S. Szopa, and M. van Roozendaal, 2006: Multi-model ensemble simulations of tropospheric NO<sub>2</sub> compared with GOME retrievals for the year 2000, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2943–2979.

Van Noije, T. P. C., A. J. Segers, and P. F. J. van Velthoven, 2006: Time series of the stratosphere-troposphere exchange of ozone simulated with reanalyzed and operational forecast data, *J. Geophys. Res.*, 111, D03301, doi:10.1029/2005JD006081.

- Wang, G. and E. Eltahir, 2000: Biosphere-atmosphere interactions over West Africa. II: Multiple climate equilibria, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 126, 1261–1280.
- Walcek, C., R. Brost, J. Chang, and M. Wesely, 1986: SO<sub>2</sub>, sulfate and HNO<sub>3</sub> deposition velocities computed using regional landuse and meteorological data, *Atmos. Environ.*, 20, 949–964.
- Walmsley, J. L. and M. L. Wesely, 1996: Modification of coded parametrizations of surface resistances to gaseous dry deposition, *Atmos. Environ.*, 30, 1181–1188.
- Waters, J.W., L. Froidevaux, R. S. Harwood, R. F. Jarnot, H. M. Pickett, W. G. Read, P. H. Siegel, R. E. Cofield, M. J. Filipiak, D. A. Flower, J. R. Holden, G. K. K. Lau, N. J. Livesey, G. L. Manney, H. C. Pumphrey, M. L. Santee, D. L. Wu, D. T. Cuddy, R. R. Lay, M. S. Loo, V. S. Perun, M. J. Schwartz, P. C. Stek, R. P. Thurstans, M. A. Boyles, K. M. Chandra, M. C. Chavez, G. S. Chen, B. V. Chudasama, R. Dodge, R. A. Fuller, M. A. Girard, J. H. Jiang, Y. B. Jiang, B.W. Knosp, R. C. LaBelle, J. C. Lam, K. A. Lee, D. Miller, J. E. Oswald, N. C. Patel, D. M. Pukala, O. Quintero, D. M. Scaff, W. Van Snyder, M. C. Tope, P. A. Wagner, and M. J. Walch, 2006: The Earth Observing System Microwave Limb Sounder (EOS MLS) on the Aura satellite, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 44, 1075–1092.
- Wesely, M., 1989: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment*, 23, 1293–1304.
- Wesely, M. L. and B. B. Hicks, 2000: A review of the current status of knowledge on dry deposition, *Atmospheric Environment*, 34, 2261–2282.
- Williams, J. E., R. Scheele, P. van Velthoven, I. Bouarar, K. Law, B. Josse, V.-H. Peuch, X. Yang, J. Pyle, V. Thouret, B. Barret, C. Lioussé, F. Hourdin, S. Szopa, A. Cozic, 2010: Global Chemistry simulations in the AMMA-Model Intercomparison project, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 91, 611–624.
- Yang, X., R. A. Cox, N. J. Warwick, J. A. Pyle, G. D. Carver, F. M. O'Connor, N. H. Savage, 2005: Tropospheric bromine chemistry and its impacts on ozone: A model study, *J. Geophys. Res.*, 110, D23311, doi:10.1029/2005JD006244.
- Yienger, J. J., and H. Levy II, 1995: Empirical model of global soil-biogenic NO<sub>x</sub> emissions, *J. Geophys. Res.*, 100(D6), 11,447–11,464.
- Zhang, X., and E.B.A. Eltahir, 1998: The role of vegetation in the dynamics of West African monsoons, *J. Climate*, 11(8), 2078–2096.
- Zhang, R. J., M. X. Wang, and Q. C. Zeng, 2000a: Global two-dimensional chemistry model and simulation of atmospheric chemical composition, *Adv. in Atmos. Sci.*, 17 (1): 72–82.
- Zhang, R., N. T. Sanger, R. E. Orville, X. X. Tie, W. Randel, and E. R. Williams, 2000b: Enhanced NO<sub>x</sub> by lightning in the upper troposphere and lower stratosphere inferred from the UARS global NO<sub>2</sub> measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 685–688.